



TITLE:

放射性廃棄物陸地保管を目的とした放射性核種の地中での挙動に関する工学的研究(Dissertation_全文)

AUTHOR(S):

西牧, 研壮

CITATION:

西牧, 研壮. 放射性廃棄物陸地保管を目的とした放射性核種の地中での挙動に関する工学的研究. 京都大学, 1978, 工学博士

ISSUE DATE:

1978-01-23

URL:

<https://doi.org/10.14989/doctor.r3493>

RIGHT:

工

390 函

1-0

放射性廃棄物陸地保管を目的とした放射性核種
の地中での挙動に関する工学的研究

昭和52年8月

西 牧 研 壯

放射性廃棄物陸地保管を目的とした放射性核種
の地中での挙動に関する工学的研究

昭和52年8月

西 牧 研 壯

放射性廃棄物陸地保管を目的とした放射性 核種の地中での挙動に関する工学的研究

目 次

序 論	1
第 1 節 はしがき	1
第 2 節 放射性廃棄物の陸地保管	6
第 3 節 本研究の目的と概要	7
序論の参考文献	8
第 I 編 放射性核種の土砂への分配に関する基礎的研究	11
第 1 章 概 説	11
第 1 節 はしがき	11
第 2 節 従来の研究	11
第 3 節 本編の目的と意義	17
第 I 編第 1 章の参考文献	23
第 2 章 微量放射性陽イオンの交換吸着体への分配におよぼす地下水中陽イオンの 個々の影響	25
第 1 節 はしがき	25
第 2 節 微量放射性陽イオンの交換吸着体への分配におよぼす Ca^{2+} の影響	25
2-1 はしがき	25
2-2 実験の方法および結果	26
2-2-1 実験に使用した放射性陽イオンと交換吸着体	26
2-2-2 交換吸着体のカルシウム	27

2-2-3	分配係数値の測定 (1) カルシウム量一定の場合	29
2-2-4	分配係数値の測定 (2) カルシウム量を変化させた場合	31
2-3	結果の考察	37
2-4	結 論	40
第3節 微量放射性陽イオンの交換吸着体への分配におよぼす地下水中陽イオン		
	の個々の影響	40
3-1	はしがき	40
3-2	交換吸着体の交換容量の測定	41
3-2-1	実験方法	41
3-2-2	実験結果および考察	43
3-3	地下水中陽イオンが分配係数に与える個々の影響	44
3-3-1	実験方法	45
3-3-2	実験結果および考察	46
3-4	結 論	54
第I編第2章の参考文献		55
第3章 微量放射性陽イオンの交換吸着体への分配におよぼす共存 Ca^{2+} と Mg^{2+} との		
	影響	56
第1節 はしがき		
		56
第2節 理論的考察		
		57
2-1	分配モデル	57
2-2	理論的考察	59
第3節 実験および結果		
		63
3-1	Ca^{2+} と Mg^{2+} との間の平衡定数の測定	63
3-2	微量放射性陽イオンの分配係数の測定	64
第4節 結果の考察		
		66
第5節 結 論		
		70

第 I 編第 3 章の参考文献	71
第 4 章 強酸性廃液の場合における放射性核種の土砂への分配	72
第 1 節 はしがき	72
第 2 節 再処理廃水中核種の砂層中での移動	74
2-1 実験方法	75
2-1-1 模擬廃水	75
2-1-2 通水実験	76
2-2 実験結果および考察	76
第 3 節 硝酸溶液が土砂におよぼす化学的影響	80
3-1 砂からの Ca および Mg の溶出	80
3-1-1 実験方法	81
3-1-2 実験結果および考察	81
3-2 硝酸溶液で侵された土砂に対する微量放射性核種の分配	86
3-2-1 実験方法	86
3-2-2 実験結果および考察	87
第 4 節 硝酸濃度が放射性核種の土砂への分配におよぼす影響	91
4-1 実験方法	92
4-2 実験結果および考察	93
第 5 節 結 論	102
第 I 編第 4 章の参考文献	104
第 5 章 放射性核種の地中移動に関する予測におよぼす分配係数値の変化の影響の試算	106

第 1 節 はしがき	106
第 2 節 試 算	106
2-1 放射性核種の地中移動時の濃度変化と分配との関係	106
2-2 ^{90}Sr の地中移動時の濃度変化と地下水中 Ca^{2+} 濃度との関係	109
第 3 節 結 論	111
第 I 編第 5 章の参考文献	112
第 II 編 放射性廃棄物の陸地保管に関する二、三の工学的研究	113
第 1 章 概 説	113
第 1 節 はしがき	113
第 2 節 放射性廃棄物の陸地保管の基礎となる工学的研究の現状	113
第 3 節 本編の目的と意義	120
第 II 編第 1 章の参考文献	120
第 2 章 某原子力施設構内における放射性核種の地中移動に関する調査研究	124
第 1 節 はしがき	124
第 2 節 野外実験	126
2-1 地 形	126
2-2 土質試験	127
2-3 浸入能測定試験	130
2-4 現場注水試験	132
第 3 節 分配係数値の測定	146
3-1 模擬地下水の作成	147
3-2 分配係数の測定および結果	149

第4節 放射性核種の地中における挙動の推定	151
4-1 注入原水の移動速度をもとにした ⁶⁰ Coおよび ⁹⁰ Srの挙動 の推定	151
4-2 等濃度曲線をもとにした ⁹⁰ Srの量的な挙動の推定	152
第5節 結 論	154
第Ⅱ編第2章の参考文献	155
第3章 放射性廃棄物の陸地保管を目的としたセメント固化に関する研究	156
第1節 はしがき	156
第2節 容積的評価法	157
2-1 容積係数VF	157
2-2 容積的評価法	158
第3節 固化試験	164
3-1 固化対象物	164
3-2 試験方法	165
3-3 試験結果	165
第4節 容積的評価法の応用	168
第5節 結 論	173
第Ⅱ編第3章の参考文献	174
結 論	176
第1節 本研究の総括	176
第2節 今後の問題点	181
第3節 謝 辞	183

序 論

第 1 節 はしがき

近年、わが国においては、原子力研究施設、原子力発電所等の原子力利用施設が増大している。これに伴い、これら施設から発生する放射性廃棄物の量も著しく増大しているが、国の方針は一応原子力委員会から昭和 51 年 10 月に発表された最終処分法はこれらの研究開発によって決定されるので発生した廃棄物は処理した当面保管されることになる。したがってこの放射性廃棄物の処分法についての研究原子力を利用する上で欠くことができない。

表 - 1 には各国の原子力発電の開発予測¹⁾、表 - 2、表 - 3 には原子力発電所が発生する放射性固体廃棄物²⁾、表 - 4 には放射性液体廃棄物³⁾などを例として示し、

表 - 1 各国の原子力発電開発予測¹⁾

(単位: GWe)

国 名 \ 年	1975	1980	1985
アメリカ	40.1	82.2	204.5
フランス	3.2	19.6	50
日本	6.6	16.6	49
西ドイツ	4.1	19.1	44.6
スペイン	1.1	8.66	23.7
イタリア	1.5	6	23
カナダ	2.5	7.2	18.2
イギリス	4.8	9.5	15.0
スウェーデン	3.18	7.36	11.3
ベルギー	1.7	3.5	9.5
スイス	1.01	3.79	8
フィンランド	—	1.5	3.9
オランダ	0.5	0.5	3.5
オーストリア	—	0.7	3
ポルトガル	—	—	2.34
デンマーク	—	—	1.8

表 - 2 BWR 型 (100MW) 発電所からの固体廃棄物の年間発生量²⁾

種類	発 生 箇 所	発生量 (m ³)	放 射 能 量 (Ci)	比放射能 (μCi/ml)
粉 末 樹 脂	(全 量)	2.68	89.23	
	浄化系脱塩器	0.22	77	350.3
			Cs-137 50.2	229
			Sr-90 0.5	2.3
			Co-58 2.3	10.3
			Co-60 22.5	102
			Mn-54 6.4×10 ⁻¹	2.9
			Fe-59 3×10 ⁻³	1×10 ⁻²
			Ag-110m 8×10 ⁻¹	3.7
			Zn-65 2×10 ⁻²	1×10 ⁻¹
	復水脱塩器	2.06	7.73	3.71
			Cs-137 5	2.4
			Sr-90 5.1×10 ⁻²	2.5×10 ⁻²
			Co-58 2.3×10 ⁻¹	1.1×10 ⁻¹
粒 状 樹 脂	燃料 ール脱塩器	0.40	—	—
	(全 量)	1.31 (3.17)	1.40 (1.40)	
	復水脱塩器	(1.86)	全て濃縮廃液へ移行	
	廃棄物処理系脱塩器	1.31	1.40	1.07
			Cs-137 1.2	9.2×10 ⁻¹
			Sr-90 1.2×10 ⁻²	9.2×10 ⁻³
			Co-58 2×10 ⁻²	1.5×10 ⁻²
			Co-60 1.6×10 ⁻¹	1.2×10 ⁻¹
			Mn-54 4×10 ⁻³	3.1×10 ⁻³
			Fe-59 2×10 ⁻⁵	1.5×10 ⁻⁵
			Ag-110m 5×10 ⁻³	3.8×10 ⁻³
			Zn-65 1×10 ⁻⁴	7.6×10 ⁻⁵

表 - 2 つづき

種類	発 生 箇 所	発生量 (m ³)	放 射 能 量 (Ci)	比放射能 (μCi/ml)
フ イ ル タ ス ラ ッ ジ	(全 量)	1.30	0.81	
	廃棄物処理系 機器ドレンフィルタ	0.93	0.80	0.85
			Co-58 7×10^{-2}	7.5×10^{-2}
			Co-60 6.9×10^{-1}	7.4×10^{-1}
			Mn-54 2×10^{-2}	2.2×10^{-2}
			Fe-59 8×10^{-5}	8.6×10^{-5}
			Ag-110m 2×10^{-2}	2.2×10^{-2}
			Zn-65 8×10^{-4}	8.6×10^{-4}
	床ドレンフィルタ	0.37	0.01	0.03
			Co-58 9×10^{-4}	2.4×10^{-3}
			Co-60 9×10^{-3}	2.4×10^{-2}
			Mn-54 3×10^{-5}	8.1×10^{-5}
			Fe-59 1×10^{-6}	2.7×10^{-6}
			Ag-110m 3×10^{-4}	8.1×10^{-4}
			Zn-65 9×10^{-6}	2.4×10^{-5}
濃 縮 廃 液	(全 量)	8.54 (89.0)	1ヶ月減衰の和 1ヶ年減衰 (31.6) (7.73)	(0.65) (0.0964)
	復水脱塩器樹脂再生 廃液	(80.5)	1ヶ月減衰の和 1ヶ年減衰	1ヶ月減衰の和 1ヶ年減
			Cs-137 5.0 5.0	6.2×10^{-2} 6.2×10^{-1}
			Sr-90 5×10^{-2} 5.1×10^{-2}	6.2×10^{-4} 6.3×10^{-3}
			Mo-99 1.6×10^{-1}	2.0×10^{-3}
			I-131 13.2	1.6×10^{-1}
			Co-58 10.3 2.3×10^{-1}	1.3×10^{-1} 2.9×10^{-1}
			Co-60 2.3 2.3	2.9×10^{-2} 2.9×10^{-1}
			Mn-54 1.7×10^{-2} 7×10^{-2}	2.1×10^{-3} 8.7×10^{-1}
			Fe-59 2×10^{-1} 2×10^{-4}	2.5×10^{-3} 2.4×10^{-1}
			Ag-110m 2.3×10^{-1} 8×10^{-2}	2.9×10^{-3} 9.9×10^{-1}
			Zn-65 1×10^{-2} 2×10^{-3}	1.2×10^{-4} 2.4×10^{-1}
	高導電率ドレン	8.54	—	—
			—	—

(出力に比例しないもの)
維 固 体 100 m³/年/原子炉1基

(注) ① 上表中 () 内の記載のあるものについては、() の外の数字は復水脱塩器に粉末樹脂を
内の数字は従来の粒状樹脂を使用したときの値である。

② 放射能量は特記以外については1年減衰後の値を示す。

表-3 PWR型(100MW)発電所からの固体廃棄物の年間発生量²⁾

種類	発生箇所	発生量(m ³)	放射能量(Ci)	比放射能(μCi/ml)
廃 樹 脂	(全量) バイパス浄化系統 浄化脱塩塔	0.6 0.11	55 35 内訳 { Mn-54 17 Fe-59 0.2 Co-58 0.1 Co-60 17.5	312 153 1.7 0.8 156
	カチオン塔	0.07	2 内訳 { Cs-134 0.4 Cs-137 1.5 Mo-99 0.1	29 6 22 1
	脱ホウ素塔	0.03	—	—
	抽出冷却材処理系統 抽出冷却材脱塩塔	0.32	18 内訳 { Cs-134 3 Cs-137 14.5 Mo-99 0.4	56 9 46 1
	蒸溜液脱塩塔	0.02	—	—
	燃料ピット 脱塩塔	0.05	—	—
濃 縮 廃 液	(全量) 一次冷却材ドレン	2.0 0.85	2 2 内訳 { Sr-89 3.9×10 ⁻⁵ Sr-90 2.4×10 ⁻⁴ Cs-134 0.45 Cs-137 1.5 Mn-54 3.9×10 ⁻² Fe-59 9.6×10 ⁻⁴ Co-58 1.7×10 ⁻⁴ Co-60 2.7×10 ⁻²	2.3 4.5×10 ⁻⁵ 2.8×10 ⁻⁴ 0.5 1.7 4.5×10 ⁻² 1.1×10 ⁻³ 1.9×10 ⁻⁴ 3.1×10 ⁻²
	樹脂再生廃液	0.15	1.5×10 ⁻⁴	1.3×10 ⁻⁴
	(出力比例しないもの) 実験室サンプリング 排水	0.6m ³ /年/原子炉	1.4 内訳 { Sr-89 2.6×10 ⁻⁵ Sr-90 1.6×10 ⁻⁴ Cs-134 0.3 Cs-137 1.0 Mn-54 2.6×10 ⁻² Fe-59 6.4×10 ⁻⁴ Co-58 1.1×10 ⁻⁴ Co-60 1.8×10 ⁻²	2.3 4.3×10 ⁻⁵ 2.6×10 ⁻⁴ 0.5 1.6 4.3×10 ⁻² 1.1×10 ⁻⁴ 1.8×10 ⁻² 3×10 ⁻²
このほか出力に比例しないものとして、 雑固体 100 m ³ /年/原子炉1基				

(注) 放射能量は1年減衰後の値を示す。

表－４ 原子力発電所から発生する液体廃棄物³⁾
BWR^{注1)}における放射性液体廃棄物

廃液区分	放射能レベル 〔 $\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 〕	全固形分 〔ppm〕	最大設計見積書 〔 $\text{m}^3/\text{年}$ 〕	発 生 源
clean wastes	$1 \times 10^{-2} \sim 5 \times 10^{-1}$	<25	3.0×10^4	機器ドレイン（原子炉建屋、タービン建屋、ドライウエル）、 廃液濃縮器からの復水 復水・脱塩、再生、逆洗水
dirty wastes	$3 \times 10^{-5} \sim 1 \times 10^{-3}$	25~200	1.1×10^4	床ドレイン（原子炉建屋、タービン建屋、廃棄物建屋、ドライウエル）、遠心分離廃液
chemical wastes	$1 \times 10^{-3} \sim 6 \times 10^{-1}$	>200	1.1×10^4	復水、脱塩、再生廃液、実験室廃液、除染廃液、高導電率放射性廃液サンプル
laundry wastes	1×10^{-4}		7.6×10^2	（洗 剤）

注1) 電気出力：公称600MW

PWR^{注2)}における放射性液体廃棄物

発 生 源	設計見積量 〔 $\text{m}^3/\text{年}$ 〕
原子炉冷却系ドレイン	410
実験室および除染系ドレイン	150
洗濯室およびホット・シャワー	180
イオン交換樹脂再生廃液	120
原子炉冷却材の抽出水その他“clean wastes”	760

注2) 電気出力：公称1000MW

放射性廃棄物は最終的には何らかの方法で処分されなければならないが、その前に通常廃棄物の性状に応じて処理が行われる。すなわち廃棄物を物理的性状によって、別すると固体廃棄物、液体廃棄物、気体廃棄物の三つに分けることができ、このうち固体廃棄物は、減容、焼却、固化等の処理を行うが、液体廃棄物^(と気体廃棄物)とはとくにその発生量が大きいため、核燃料再処理廃水⁴⁾などのように放射性物質濃度のきわめて高いものを数年間液状貯留後固化する以外は、発生後すみやかに分離、濃縮等の減容処理を行い⁵⁾、その性状を固体または固体状に変えた後、固化等の処理を行う。なお除染処理済みの液体および気体はMPCwまたはMPCaを考慮して環境に放出するのが普通である。また米国などでは液体廃棄物を直接地中に注入するいわゆる廃水地中処分を行っているが⁶⁾⁷⁾⁸⁾⁹⁾、わが国のように国土の狭い国での適用を考えると未解明な問題が多く残されている。また核燃料再処理廃水についても数年貯留後、ガラス化等²⁰

21) 22) の処理を行う方法がほぼ確立されつつある。

処理済みの放射性廃棄物の最終処分法としては陸地処分、深地層処分、海洋処分、宇宙処分および消滅処分法が考えられる。このうち宇宙処分と消滅処分とに関する研究はまだ始まったばかりで¹⁹⁾、実用にはかなりの時間が必要なものと考えられる。したがって現在のところ、実用可能な最終処分法は陸地処分^{15) 16)}と海洋処分^{11) 12) 13) 14)}とである。

海洋処分は最初に米国が行ったがその後中止しており、現在は主としてヨーロッパで試験的海洋処分として実施されている。わが国においても昭和 53 年度頃には太平洋で試験的投棄を行う計画が進められている²³⁾。この処分法は、海洋の規模から考えても大量の廃棄物を処分できる点で優れているが、一度投棄した廃棄物は、回収に多くの困難があることや、海洋の広さからモニタリングが非常に困難であること等から環境安全確保について十分配慮する必要がある。

一方、陸地処分は主として国土の広い米国、カナダ等で実施されている¹⁰⁾。この処分法は廃棄物の処分量は処分地の広さによって制約されるが、土壌の持つイオン交換能の利用、処分した廃棄物の回収が可能、モニタリングが海洋処分よりも容易である点で環境安全確保の点から優れている¹⁶⁾。わが国は国土が狭いため、陸地処分は不適にみえるが前述した陸地処分の有する利点を活用できる保管施設のようなものを作れば、わが国でも可能であり、さらに十分な調査と安全性評価を行えば低レベル放射性廃棄物については米国等で行われているような廃棄物を直接地中に埋設する方法¹⁰⁾も可能であると考えられる。

そこで、わが国で放射性廃棄物の陸地処分を行うことを最終目標として研究を行った。

第 2 節 放射性廃棄物の陸地保管

放射性廃棄物の発生から最終処分までの主な流れを示すと図-1 のようになる。

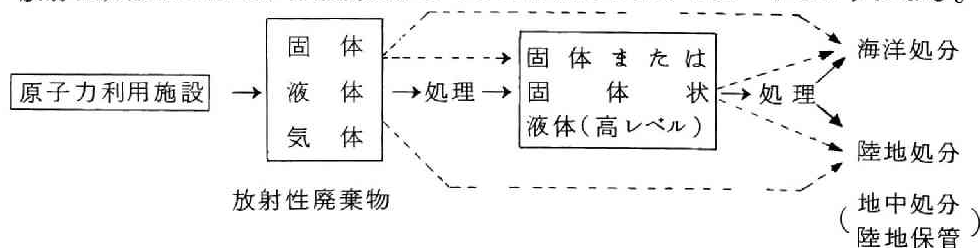


図-1 放射性廃棄物の発生から最終処分までの流れ

わが国においては現在のところ、海洋処分も陸地処分も実際には行われておらず、国が処分法を決定するまで、一時陸地保管している状態が続いているが^{10) 23)}、海洋処分に関する研究は固化処理法^{11) 12)}、固化体からの放射性核種の浸出^{11) 13) 14)}、深海における放射性核種の拡散^{2) 11)}などについて詳細に行われている。一方、陸地処分に関しても、最近非常に研究が進み¹⁵⁾、土壌の持つイオン交換能が活用でき、万一の場合には放射性廃棄物を回収できるなどの点で注目されている¹⁶⁾。

図－１にも示したように放射性廃棄物の陸地処分は、大別すると地中処分と陸地保管に分けることができる。両者の大きな相違は前者が土壌のもつイオン交換能を積極的に利用しようとするのに対して、後者はイオン交換能を事故時にのみ期待しようとする点である。わが国における陸地処分を考えた場合、国土の大きさ、国民感情などの点から、現状では陸地保管が適していると考えられる。

放射性廃棄物の陸地保管を行うにあたっては、研究すべき種々の課題があるが、大別すると、土壌の持つイオン交換能に関する研究と、実際に陸地保管を行うために必要な、処理法に関する研究、保管法に関する研究、安全評価に関する研究等の工学的問題点を多く含んだ研究とになる。本研究はこのうちで廃棄物中核種の地中での挙動に関する基礎的、工学的研究を主目的とし、併せて、土砂の持つイオン交換能を期待し、保管容量の低減化をはかり、国土の狭少なわが国の実情に即した廃棄物の固化法をも研究したもので、次節に目的と概要を詳しく述べる。

第３節 本研究の目的と概要

放射性廃棄物の陸地処分は海洋処分と並んで放射性廃棄物の重要な最終処分法である。特に陸地処分の場合は海洋処分と違って、処分した廃棄物および廃棄物から漏洩する放射性核種の監視が割り合い容易であるうえ、万一事故時には処分した廃棄物を取り出すことが出来る利点がある。

放射性廃棄物の陸地処分法には廃棄物を直接土中に埋設または注入する地中処分法と、なんらかの保管施設を設けて処分する陸地保管があるが、本研究では我国の国土国民感情などを考慮して後者を目的とした。もちろん本研究で得られた成果は、前者にも応用できる。

放射性廃棄物の陸地管理を行う上での最大の利点の１つは、土壌のイオン交換能を期待できることである。すなわち浸水等により水中に溶出し、水とともに水中に浸入した放射性核種は土壌のもつイオン交換能のため、地下水と土壌との間に分配がおこ

り土壌に分配（本論文では水中の放射性核種が水と接する土壌への交換吸着することを分配と呼ぶ）された放射性核種は、地中をきわめてゆっくりと移動し、その間に放射性核種の自然崩壊を期待できるという点である。この移動現象を示す理論式は種々のものが提案され¹⁵⁾¹⁷⁾¹⁸⁾なかでも井上の理論¹⁵⁾が実際の地層に良く一致することが知られている。しかし、放射性核種の地下水と土壌との間の分配現象（以下簡単に土砂等への分配現象と略記する）に関する化学的な研究は充分には行われていない。

そこで第Ⅰ編では放射性核種の土砂への分配現象を把握するために基礎的な実験的研究を行った。

一方、実際に陸地管理を行うにあたっては、処理に関する問題、陸地保管法に関する問題、放射性核種の地中移動に関する問題、放射性核種の大気中での移動に関する問題、放射性廃棄物からの外部被曝に関する問題、モニタリングに関する問題、人体への影響に関する問題等、工学的問題点が含まれる問題が多い。これらの問題に関する研究の現状を検討してみると、特に研究を進める必要のある課題として、目的とする陸地保管地地域における放射性核種の地下移動に関する研究や陸地保管を目的とした放射性廃棄物の固化法に関する研究などが考えられる。

そこで第Ⅱ編では、某原子力施設構内における放射性核種の地中移動に関する調査研究と陸上保管を目的としたセメント固化に関する研究とを行った。

序論の参考文献

- 1) 浅田忠一他；“原子力ハンドブック、オーム社、604（1976）。
- 2) “放射性固体廃棄物処理・処分検討会報告書”、実業公報社（1972）
- 3) Blomeke, J.O. and F.E.Harrington; **ORNL-4070**（1968）。
- 4) IAEA; “Treatment and Storage of High-Level Radioactive Wastes”, Proceedings of the Symposium on Treatment and Storage of High-Level Radioactive Wastes in Vienna, 8-12 October 1962（1963）。
- 5) 筒井天尊、下浦一邦；“京都大学原子炉実験所放射性廃棄物処理施設の設計”、KURRI-TR-80（1970）。
- 6) Marter, W.L.; “Ground waste disposal practices at the Savannah River plant”, Disposal of Radioactive Wastes into the Ground, IAEA **SM 93/7**, 95（1967）。

- 7) Merritt, W.F. and C.A. Mawson; "Experiences with ground disposal at Chalk River", Dioposal of Radioactive Wastes into the Ground, IAEA **SM 93/6**, 79 (1967).
- 8) McClain, W.C.; "Hydraulic fracturing as a waste disposal method", Dioposal of Radioactive Waste into the Ground", IAEA **SM 93/10**, 135 (1967).
- 9) Tamura, T.; "Dioposal of radioactive wastes by hydraulic fracturing, Part IV, Chemical development of waste-cement mixes", Nuclear Engineering and Design, **5**, 477 (1967).
- 10) 原子力安全研究協会; "固体廃棄物処理処分専門委員会 昭和48年度成果報告書", (1974).
- 11) 寺島 泰; "放射性廃棄物の固化処理と海洋投棄処分とに関する研究", 京都大学学位論文 (1969).
- 12) 原子力安全研究協会; "放射性廃棄物の固化試験、固体廃棄物処理処分専門委員会", (1973).
- 13) 江村悟他; "放射性廃棄物セメント固化体の安全評価 1. セメント固化体からの ^{137}Cs の浸出", JAERI-M5779 (1974).
- 14) 松鶴秀夫他; "放射性廃棄物セメント固化体の安全評価 2. セメント固化体からの ^{60}Co の浸出", JAERI-M 6361 (1976).
- 15) 井上頼輝; "放射性廃棄物の地中処分に関する基礎的研究", 京都大学学位論文 (1970).
- 16) 筒井天尊、西牧研社; 保健物理、**9**, 87 (1974).
- 17) Thomas, H.C.; Jour. Am. Chem. Soc., **66**, 1664 (1954).
- 18) Hiester, N.K. and T. Vermeulen; Chem. Eng. Progress, **48**, 505 (1952).
- 19) 井上頼輝、森沢真輔; 原子力工業、**21**, 31 (1975).
- 20) Halaszovich, St. et al; "FIPS-A Process for the Solidification of Fission Product Solutions Using a Drum Drier", International Symposium on the Management of Radioactive Wastes from the Nuclear Fuel Cycle IAEA, **SM-207/19** (1976).
- 21) Guber, W. et al; "Lab Scale and Pilot Plant Experiments on

the Solidification of High Level Wastes at the Karlsruhe Nuclear Research Center", International Symposium on the Management of Radioactive Wastes from the Nuclear Fuel Cycle IAEA, **SM-207/79** (1976).

22) Bocola, W.; "Hot-cell Experiments of the Pot-Vitrification of Fully Radioactive Fuel Reprocessing Wastes", International Symposium on the Management of Radioactive Wastes from the Nuclear Fuel Cycle, IAEA, **SM-207/85** (1976).

23) 科学技術庁； 原子力委員会月報、**Vol. 21, No. 7, 30** (1976).

第Ⅰ編 放射性核種の土砂への分配に関する基礎的研究

第1章 概 説

第1節 はしがき

放射性廃棄物を陸地保管している時に、地震等による貯蔵容器の破損、雨水、地下水等による冠水などの万一の事故を想定し、その場合に放射性廃棄物中の放射性核種が漏洩し、地下水中に混入した場合でも有効な監視を行うことができるように、これらの核種が地下水中でどのような挙動をとるかを研究することは施設および環境の安全性評価を行う上で重要な問題である。

本編では、放射性核種の地中移動に関して、基礎的な研究を行ったが、まず、本章において従来の研究を中心として、放射性核種の地中移動に関する研究の概要および問題点を述べ、ついで、本編の目的およびその意義について述べる。

第2節 従来の研究

地下帯水層を構成する土砂は、通常電氣的に負に帯電しているため、陽イオン交換能を有している（まれに陰イオン交換能を有することがある¹⁾）ことが知られている²⁾。

したがって地下帯水層に移行した放射性陽イオンは、土砂の有するイオン交換吸着のため、土砂への吸着、脱離を繰り返しながら、ゆっくりと帯水層中を移動する。

この現象を説明する理論としては、種々のものが提案されているが、まず、円筒中のイオン交換の際の溶出曲線について提案された Thomas の理論³⁾、Hiester および Vermeulen の理論⁴⁾、について説明する。

(1) Thomas の理論³⁾

H.C.Thomas は、一価のイオン B により飽和された交換剤を用いて、一価のイオン A を除去する場合について検討した。まず円筒内の流水は方向一定で一様として、つぎのような連続式を提案した。

$$\frac{\partial C_A}{\partial \ell} + \frac{f}{v} \frac{\partial C_A}{\partial t} + \frac{1}{v} \frac{\partial q_A}{\partial t} = 0 \quad (\text{I-1-1})$$

ただし、

t : 時 間

ℓ : ろ層内任意深さまでのろ層の体積

C_A : イオン A のろ液中濃度

f : ろ層の空隙率

v : ろ過率

q_A : 交換剤に吸着されたイオン A の量

また、化学反応速度を表わす律速式としてはつぎの 2 次式を提案した。

$$\frac{\partial q_A}{\partial t} = k_1 (q_{\text{sat}} - q_A) C_A - k_2 (C_0 - C_A) q_A \quad (\text{I-1-2})$$

ただし、 q_{sat} : 交換剤の交換容量

C_0 : 原水中のイオン A の濃度

k_1, k_2 : 速度定数

(I-1-1) 式と (I-1-2) 式とを連立させて厳密に解くのはむづかしいので、

$q_A \ll q_{\text{sat}}$, $C_A \ll C_0$ の場合には (I-1-2) 式が近似的に、交換速度が薄膜拡散のみに支配されるとして得られる律速式と同じ形になることを指摘して、その解を得た。

$$\frac{C_A}{C_0} = e^{-\left(\frac{k'_1}{v}\ell + \frac{k'_2}{v}V\right)} \left\{ I_0 \left(2\sqrt{\frac{k'_1}{v}\ell \cdot \frac{k'_2}{v}V} + \varphi \left(\frac{k'_2}{v}V, \frac{k'_1}{v}\ell \right) \right) \right\} \quad (\text{I-1-3})$$

$$\frac{q_A}{q_{\text{sat}}} = e^{-\left(\frac{k'_1}{v}\ell + \frac{k'_2}{v}V\right)} \left\{ \varphi \left(\frac{k'_2}{v}V, \frac{k'_1}{v}\ell \right) \right\} \quad (\text{I-1-4})$$

ただし、

K_1 : $k_1 q_{\text{sat}}$

k'_2 : $k_2 C_0$

V : 流水量

I_0 : Bessel 関数で

$$I_0(x) = \frac{1}{\pi} \int_0^\pi \cos(-x \sin \theta) d\theta \quad (\text{I-1-5})$$

$$\varphi \left(\frac{k'_2}{v}V, \frac{k'_1}{v}\ell \right) = e^{-\frac{k'_2}{v}V} \int_0^{\frac{k'_2}{v}V} e^{-\bar{t}} I_0 \left(2\sqrt{\frac{k'_1}{v}\ell \cdot \bar{t}} \right) d\bar{t} \quad (\text{I-1-6})$$

この解の (I-1-3), (I-1-4) 式は Bessel 関数を含んでいるので計算が非常に

困難である。そこでさらにこれを近似して、

溶出曲線の立ち上がりまで；

$$\frac{C_A}{C_0} \cong \frac{1}{2\sqrt{\pi}} e^{-\left(\sqrt{\frac{k'_1}{v}}\ell - \sqrt{\frac{k'_2}{v}}V\right)^2 \frac{\left(\frac{\frac{k'_1}{v}\ell}{\frac{k'_2}{v}V}\right)^{1/4}}{\sqrt{\frac{k'_1}{v}}\ell - \sqrt{\frac{k'_2}{v}}V}} \quad (\text{I-1-7})$$

中間の部分；

$$\frac{C_A}{C_0} \cong 1 - \frac{1}{2\sqrt{\pi}} e^{-\left(\sqrt{\frac{k'_2}{v}}V - \sqrt{\frac{k'_1}{v}}\ell\right)^2 \frac{\left(\frac{\frac{k'_1}{v}\ell}{\frac{k'_2}{v}V}\right)^{1/4}}{\sqrt{\frac{k'_2}{v}}V - \sqrt{\frac{k'_1}{v}}\ell}} \quad (\text{I-1-8})$$

飽和点；

$$\frac{C_A}{C_0} \cong \frac{1}{2} + \frac{1}{4\sqrt{\pi}} \frac{\sqrt{v}}{(k'_1 k'_2 \ell V)^{1/4}} \quad (\text{I-1-9})$$

を得ている。

(2) Hiester および Vermeulen の理論⁴⁾

Hiester および Vermeulen は等価イオン間について、Thomas と同じ連続式と律速式とを用いて厳密解を得た。

$$\frac{C_A}{C_0} = \frac{J(t, rs)}{J(rs, t) + e^{(r-1)(t-s)} [1 - J(s, rt)]} \quad (\text{I-1-10})$$

$$\frac{q_A}{q_{\text{sat}}} = \frac{1 - J(t, rs)}{J(rs, t) + e^{(r-1)(t-s)} [1 - J(s, rt)]} \quad (\text{I-1-11})$$

ただし、

$$r = \frac{k_2}{k_1} = \frac{1}{K}$$

$$s = \frac{K f \ell}{v}$$

$$t = \frac{V - f\ell}{v}$$

J : Furnas の導いた Bessel 関数

$$J(x, y) = \frac{1}{2} \left\{ 1 - H(\sqrt{x} - \sqrt{y}) + \frac{e^{-(\sqrt{x} - \sqrt{y})^2}}{\sqrt{\pi} [\sqrt{y} + \sqrt{xy}]} \right\} \quad (I-1-12)$$

$$H(z) = \operatorname{erf}(z) = \left(\frac{2}{\sqrt{\pi}} \right) \int_0^z e^{-\zeta^2} d\zeta \quad (I-1-13)$$

(I-1-10), (I-1-11) 式の数値計算は複雑なため、図 I-1-1 のような図表を作成して解を求めている。

また、異価のイオン間に関しては、律速式として

$$\frac{d(q_A/q_{\text{sat}})}{d(k q_{\text{sat}}^{n-1} C_o t)} = \frac{C_A}{C_o} \cdot \left(1 - \frac{q_A}{q_{\text{sat}}} \right)^n - \frac{C_o^{n-1}}{K q_{\text{sat}}^{n-1}} \cdot \frac{q_A}{q_{\text{sat}}} \cdot \left(1 - \frac{C_A}{C_o} \right)^n \quad (I-1-14)$$

なる化学反応型 (n+1) 次式をあげているが、これをもちいて解を得ることが難しいので、等価イオン間の時と同じく二次反応の律速式を用い、ただ K として

$$K'' = \frac{1}{r} = \left[K \left(\frac{q_{\text{sat}}}{C_o} \right)^{n-1} \right]^{\frac{2}{n+1}} \quad (I-1-15)$$

を用いると、良い近似式を得ることを示した。

以上述べた 2 つの理論が円筒中でのイオン交換の際の溶出曲線に関する理論であるが、これら以外にも、井上⁵⁾、Ogata および Banks⁶⁾らが、Bessel 関数を用いずに指数関数の組み合わせとしての解をより実用的なものとして提案している。

いずれにしても、これらの理論は、円筒内におけるイオン交換の溶出曲線に関しては非常に良く実測値と合うことが示されているが、複雑な地層を示す実際の地下帯水層中での移動の推定に使用するのには危険が多い。

そこで、井上⁷⁾⁸⁾は、実際の地下帯水層での放射性核種の移動を示す式として 3 次元の移動式を示し、この移動式を時間変換することによって、きわめて実用的に、放射性核種の地下帯水層での移動状態を知ることができることを示した。この井上の理論⁷⁾⁸⁾をつぎに述べる。

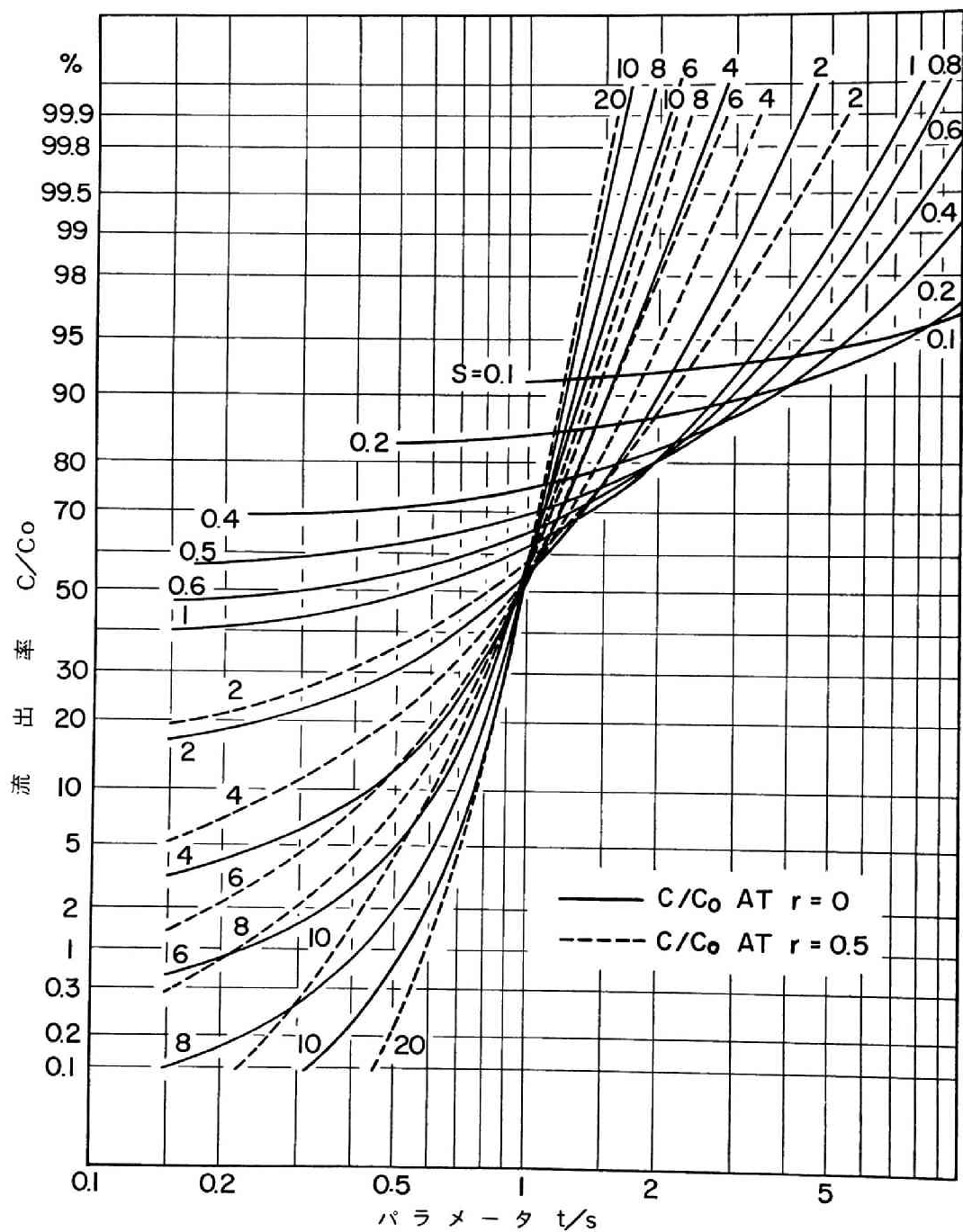


図 I-1-1 Hiester および Vermeulen の理論の解の
一例⁴⁾

(3) 井上の理論⁷⁾⁸⁾

井上は 3 次元の移動式としてつぎのものを示した⁹⁾。

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left\{ c + \frac{1-f}{f} \rho q \right\} = & \frac{\partial}{\partial x} \left(D_x \frac{\partial c}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(D_y \frac{\partial c}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(D_z \frac{\partial c}{\partial z} \right) \\ & - \frac{\partial}{\partial x} (\bar{v}_x C) - \frac{\partial}{\partial y} (\bar{v}_y C) - \frac{\partial}{\partial z} (\bar{v}_z C) \quad (I-1-16) \end{aligned}$$

ただし、

c : 放射性核種の地下水中濃度

f : 地下帯水層の空隙率

ρ : 地下帯水層を構成する土砂の密度

q : 放射性核種の土砂への吸着量

D_x, D_y, D_z : x, y, z 軸方向の拡散係数

$\bar{v}_x, \bar{v}_y, \bar{v}_z$: x, y, z 軸方向の平均流速

(I-1-16)式は一般に解くことができない。そこで井上は地下水の流速がきわめて遅いために、地下水中に含まれる放射性核種は地下水中に主として含まれるイオン B と交換平衡にあると考えた。この場合一般に次式が成立する⁸⁾。

$$q = K_d \cdot C \quad (I-1-17)$$

ただし、

K_d : 分配係数で地下水質が変化しない時には一定値を示す。

この結果、次式が得られる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial C}{\partial T} = & \frac{\partial}{\partial x} \left(D_x \frac{\partial C}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(D_y \frac{\partial C}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(D_z \frac{\partial C}{\partial z} \right) \\ & - \frac{\partial}{\partial x} (\bar{v}_x C) - \frac{\partial}{\partial y} (\bar{v}_y C) - \frac{\partial}{\partial z} (\bar{v}_z C) \quad (I-1-18) \end{aligned}$$

ただし

$$T = (1/K_f) \cdot t \quad (I-1-19)$$

K_f : K_f 値

$$K_f = 1 + \frac{1-f}{f} \cdot \rho \cdot K_d \quad (I-1-20)$$

(I-1-18)式は新しい時間Tを導入して得られたもので、これは土への吸着がない、すなわち地下水の動きを示す式にほかならない。

以上のように井上は、放射性核種の移動式を求めずに、時間変換によって移動式が地下水流の式に変換できること、すなわち目的とする地下帯水層の地下水を ^8H でラベルしてその流速を求め、これに $1/K_f$ を乗じれば、放射性核種の移動状態が求まることを示した。

この方法は実験値と理論値とが良く一致し⁹⁾、現在、最も実用性の高い方法であるといえる。しかし、この方法を実際に適用するにあたって、 K_d は地下水中に含まれる非放射性イオンの種類と濃度とによって異なるために、実測しなければならない。

第3節 本編の目的と意義

前節で述べた井上の理論⁷⁾⁸⁾において重要な意味をもつのは時間変換係数 K_f 値で、

$$K_f = 1 + \frac{1-f}{f} \cdot \rho \cdot K_d \quad (I-1-20)$$

ただし、

f : 地下帯水層の空隙率

ρ : 地下帯水層を構成する土砂の密度

K_d : 分配係数

と示されることはすでに示した。

(I-1-20)式中、 f 、 ρ 、 K_d はいずれも地下帯水層の性状によって定まる値であるが、なかでも K_f 値の大きさを支配するものは、分配係数 K_d であることがわかる。すなわち、 f は地下帯水層の空隙率で、その値は約0.35～0.45であるのが普通なので $(1-f)/f$ の項の値は約1.9～1.2で最小値と最大値の比は約1.6であり、 ρ は土砂の密度で、その値は約2.0～3.0としても最小値と最大値の比は約1.5である。それにひきかえ、分配係数値は本編第5章でも後述するように地下水中に溶存する Ca^{2+} 、 Mg^{2+} などの量によって f や ρ よりも大きく変化する。

分配係数 K_d は

$$K_d = q/c \quad (\text{I-1-17'})$$

ただし、

q : 放射性核種の土砂中の濃度

c : 放射性核種の地下水中濃度

で示され、土砂に対する放射性核種の吸着現象を示す一つの指標である。

一般に土砂は、その各成分をなす粘土鉱物の結晶格子における電価が不均衡なため、電気的中性を保つ必要が生じて、結晶格子の各部からカチオンを吸着する。また土壌中の有機物も、カルボキシル、フェノール基などのイオン化の結果、負に電化した粒子を生じ、外部からカチオンを吸着するようになるといわれている¹⁰⁾。

イオン交換反応は一般に次式のように行われる。



ただし、

R : 土砂等のように交換能を有する固体

A, B : 液相中にある交換にあずかる陽イオン

$Ab \cdot R, Ba \cdot R$: 固相中にある A, B イオン

a, b ; A, B イオンのみかけの電荷の数

(I-1-21)式において、液相と固相とが十分な時間だけ接触したのちに、 A, B 両イオン間に、ある平衡状態が成立する。この平衡状態に対しては、さかんに理論的研究が行われてきた¹¹⁾。

Wiegner¹²⁾, Vagelar¹³⁾等はこの現象を吸着と考えて理論を提案している。たとえばWiegner¹²⁾は現象を Freundlich 型吸着とみて

$$q_A = p \left\{ \frac{C_A}{C_{A0}} \right\}^{1/n} \quad (\text{I-1-22})$$

ただし、

q_A : 固相中の陽イオン A の平衡時の濃度

C_A : 液相中の陽イオン A の平衡時の濃度

C_{A0} : 液相中の陽イオン A の初期濃度

p, n : 定数

を提案した。

また、Vagelar¹⁸⁾は現象を Langmuir 型吸着とみて、

$$q_A = \frac{C_A \cdot q_\infty}{C_A + p'} \quad (I-1-23)$$

ただし、

q_∞ : 交換吸着体の飽和吸着量

p' : 定数

を示した。

しかし、これらの理論は、いずれも大きな影響を持つと考えられるイオン B の影響を計算にいていないため、地下帯水層へ放射性核種が混入した場合のように、イオン A が微量で、イオン B (Ca^{2+} など) の方が大量に存在するといった現象を扱う場合には適用できない。

一方、イオン交換の立場から現象をながめると、つぎの関係が成立する¹⁴⁾。

$$K_c = \frac{(B^{+b})^a \cdot (A_b \cdot R)^b}{(A^{+a})^b \cdot (B_a \cdot R)^a} \quad (I-1-24)$$

ただし、

K_c : 平衡定数

$(A^{+a}), (B^{+b})$: 液相中でのイオン A, B の活量 (ionic activity)

$(A_b \cdot R), (B_a \cdot R)$: 固相中でのイオン A, B の活量

イオンの液相中での活量は電離度などでかなり明らかにされているが、イオンの固相中での活量については、色々の仮説があり、これを明らかにすることは非常に困難である。そこで活量のかわりに、液相中、固相中でのイオンの当量濃度を用いる。すると (I-1-24) 式は、

$$K = \frac{C_B^a \cdot q_A^b}{C_A^b \cdot q_B^a} \quad (I-1-25)$$

ただし、

C_A, C_B : A, B イオンの液中濃度 (meq/ml)

q_A, q_B : A, B イオンの吸着量 (meq/g)

K : 質量作用定数 (Mass Action Constant)

となる。

しかし、K の値は一般に、等価で同族でかつ同じレベルの濃度で存在するイオン間では一定値を示すが¹⁵⁾、この条件以外は一定値を示さない。

そこで、活量を濃度で近似する時に補正項を導入する研究が種々なされた。

まず液相中のイオンの活量は Lewis および Randall¹⁶⁾ の提唱したイオン強度 (ionic strength) の原則に関する研究結果から、一般につきのように表わされている。

$$(A^{+a}) = \gamma_A \cdot C_A \quad (I-1-26)$$

$$(B^{+b}) = \gamma_B \cdot C_B \quad (I-1-27)$$

ただし、

γ_A, γ_B : A, B イオンの液相中での活量係数

これに対して、固相中でのイオンの活量については、定説がなく、多くの仮説が出されている。Vanselow¹⁷⁾ は、交換体中のイオンの活量は次式のように当量分布に等しいとした。

$$(A_b \cdot R) = \frac{q_A / a}{q_A / a + q_B / b + \cdots q_N / n} \quad (I-1-28)$$

$$(B_a \cdot R) = \frac{q_B / b}{q_A / a + q_B / b + \cdots q_N / n} \quad (I-1-29)$$

ただし、

$q_A, \cdots q_N$: 交換体中に吸着されたイオン量 (meq/g)

$a, \cdots n$: イオンのみかけの電価の数

この仮説から Boyd は次式を導いた¹⁸⁾。

$$K' = \frac{C_B^a \cdot q_A^b (r_B)^{(b+1)a}}{C_A^b \cdot q_B^a (r_A)^{(a+1)b}} (q_A/a + q_B/b)^{a-b}$$

$$= K \cdot \alpha \cdot \beta \quad (\text{I-1-30})$$

ただし、

$$\alpha = \frac{(r_B)^{(b+1)a}}{(r_A)^{(a+1)b}} \quad (\text{I-1-31})$$

$$\beta = (q_A/a + q_B/b)^{a-b} \quad (\text{I-1-32})$$

また一方、KrishnamoorthyおよびOverstreetは¹⁹⁾、多価イオンの吸着は結晶格子における交換基の近さに依存するとし、やはり統計的概念から、Vanselowと同型の式から次式を示した。

$$K'' = \frac{C_B^a \cdot q_A^b \cdot (r_B)^a}{C_A^b \cdot q_B^a \cdot (r_A)^b} \left(\frac{(a+1)}{2} \cdot a \cdot q_A + \frac{(b+1)}{2} \cdot b \cdot q_B \right)^{a-b}$$

$$= K \cdot \phi \cdot \pi \quad (\text{I-1-33})$$

ただし、

$$\phi = \frac{(r_B)^a}{(r_A)^b} \quad (\text{I-1-34})$$

$$\pi = \left(\frac{(a+1)}{2} \cdot a \cdot q_A + \frac{(b+1)}{2} \cdot b \cdot q_B \right)^{a-b} \quad (\text{I-1-35})$$

これ以外にも、Dunkan²⁰⁾、Cohen²¹⁾、HierterおよびVermeulen⁴⁾、Ewing²²⁾などが種々の研究を行っている。

しかし、どの理論も等価イオン間については、わり合い良く一致するが、異価イオン間については、あまり良い一致をみない^{23),24)}。さらに本編の目的とするように地下水に非放射性成分が多種、大量に存在するところへ微量の放射性核種が混入し、平衡に達している状態に関しては、十分に説明されていない²⁵⁾。

したがって (I-1-20) 式で示された K_f 値を求めるにあたっては、地下水質が変化しない時には (I-1-17') 式で示された分配係数 K_d は一定値であるとみなして、目的とする地下帯水層から土砂と地下水を採取して (実際には採取するのは非常に困難である)、採取した水に放射性核種を加えたものと、採取した砂を用いて目的核種の分配係数を実測しているが、 K_d は地下水中の非放射性成分量によって影響をうけるので、この影響の評価の方法を明らかにする必要がある。

そこで、微量の放射性核種が土砂のような粘土鉱物に交換吸着 (吸着だけでなく、一部吸収も考えられ、併せて収着²⁷⁾と呼ぶこともある) する現象を分配と呼ぶことにし、本編第 2 章において、微量の放射性陽イオンが粘土鉱物 (交換吸着体) に分配する場合に、地下水中に主として存在する Ca^{2+} 、 Mg^{2+} および Na^+ が個々に影響を与える場合について研究を行った。

ついで本編第 3 章においては、第 2 章の研究結果をもとに、 Ca^{2+} と Mg^{2+} が共存して微量放射性陽イオンの分配現象に与える影響について研究を行った。

つぎに、本編第 2 章、第 3 章においては、通常の地下帯水層における微量放射性陽イオンの挙動を目標に研究を行ったが、近年、問題となっている核燃料再処理廃水が地下帯水層に混入した場合には、地下帯水層自体が大きな影響をうける²⁶⁾ので、本編第 4 章においては、核燃料再処理廃水中核種の地下帯水層での移動について研究を行った。

最後に、本編第 5 章においては、本編第 2 章、第 3 章、第 4 章の研究結果の総まとめとして、放射性核種の地中移動を予測する際の分配のはたす役割について簡単な試算を行った。

第 I 編 第 1 章の参考文献

- 1) 筒井天尊、桂山幸典、西牧研社；“放射性廃棄物の処分に関する研究”、KURRI-TR-121 (1973)。
- 2) 筒井天尊、西牧研社；土木学会論文報告集、第 200 号, 25 (1972)。
- 3) Thomas, H.C. ; Jour. Am. Chem. Soc., 66, 1664 (1954)。
- 4) Hiester, N.K. and T. Vermeulen ; Chem. Eng. Progress, 48, 505 (1952)。
- 5) 井上頼輝；土木学会論文集、第 58 号, 38 (1958)。
- 6) Ogata, A. and R.B.Banks ; “Dispersion of fluid flow in porous media” Doctoral Thesis, North Western University, (1959)。
- 7) Inoue, Y. and W.J.Kaufman ; Health Phys., 9, 705 (1963)。
- 8) 井上頼輝；“放射性廃棄物の地中処分に関する基礎的研究,” 京都大学学位論文 32 (1970)。
- 9) 井上頼輝；“放射性廃棄物の地中処分に関する基礎的研究,” 京都大学学位論文 45 (1970)。
- 10) Thomas, H.C. ; “The interaction of radioactive nuclide and soils”, Industrial Radioactive Waste Disposal, 3, 1865 (1959)。
- 11) 清水 博；“イオン交換樹脂”, 共立出版, 78 (1961)。
- 12) Wiegner, G. ; Jour. Soc. Chem. Ind., 50, 65 (1931)。
- 13) Nachod, F.C. ; “Ion Exchange”, Academic Press, New York, (1949)。
- 14) Orcutt, R.G., W.J.Kaufman and G.Klein ; “The Movement of Radiostrontium Through Porous Media”, Progress Report No.2 San. Eng. Research Lab., Univ. of Calif., Berkeley, (1956)。
- 15) 本田雅健；“イオン交換” 南江堂, 26 (1962)。
- 16) Lewis, G.N. and M.Randall ; “Thermodynamics and the Free Energy of Chemical Substances”, McGraw-Hill Book Co., Inc., (1923)。
- 17) 本田雅健；“イオン交換”, 南江堂, 222 (1962)。
- 18) Boyd, G.E., J.Schubert and A.W.Adamson ; Jour. Am. Chem. Soc., 69, 2818 (1947)。
- 19) Krishnamoorthy, C. and R.Overstreet ; Soil Sci., 68, 307 (1949)。
- 20) Duncan, J.F. and B.A.Lister ; Jour. Am. Chem. Soc., 71, 3294 (1949)。

- 21) Cohen, P. and C. Gailledreau; "Preliminary Investigation of the Adsorption of Radiostrontium in Saclely Soil, Ground Disposal of Radioactive Wastes, Conference Proceedings, Berkeley, Calif., Aug. 25-27, 1959.," San. Eng. Research Lab., Univ. of Calif., Berkeley (1961).
- 22) Ewing, B.B.; Development of Design Criteria for Under-Ground Disposal of Radioactive Wastes, Doctoral Thesis, Univ. of Calif., Berkeley (1961).
- 23) 山本 寛; "イオン交換(上)", 日刊工業新聞社, 10 (1961).
- 24) 井上頼輝; "放射性廃棄物の地中処分に關する基礎的研究" 京都大学学位論文, 24 (1970).
- 25) 筒井天尊、西牧研壯; 保健物理、10, 79 (1975).
- 26) 岩井重久、井上頼輝、西牧研壯; 日本原子力学会誌、10, 435 (1968).
- 27) 慶伊富長; "吸着", 共立全書, 1 (1965).

第2章 微量放射性陽イオンの交換吸着体への分配におよぼす地下水 中陽イオンの個々の影響

第1節 はしがき

地下水中には種々の陽イオンが含まれているが、それらは主として、 Na^+ 、 Ca^{2+} および Mg^{2+} であり¹⁾、地下水の移動速度 ($10^{-6} \sim 10^{-4} \text{ cm/sec}$) はきわめておそいため、地下帯水層を構成する土砂 (交換吸着体) はこれらのイオンと交換平衡に達しており、土砂の有する交換吸着の座はこれらのイオンで飽和に達していると推測できる²⁾³⁾。

一方、地下水中のこれらのイオンの量 (通常の地下水では $10 \sim 100 \text{ ppm}$ 程度) に比べて、地下水中に混入する放射性陽イオンの量はきわめて微量 (本章の研究では $10^{-2} \mu\text{Ci/ml}$ 程度のものを考えているが、これを ppm で表示すると、最高 10^{-3} ppm 程度) であるので、放射性陽イオンの水と土壌との間の分配は、これら Na^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} の量によって支配されると考えられる。

しかるに、これら3種の陽イオンの影響を同時に取り扱うことは非常に困難であるので、まず個々の影響を調べる必要がある。

一般に原子力発電、核燃料再処理などの原子力産業から排出される放射性核種⁴⁾のうち、人体への影響、放射性イオン自身の半減期から、環境安全上、危険度の高い放射性陽イオンとしては、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 、 ^{60}Co 、 ^{54}Mn 等が考えられるが、本章ではまずモデル化に必要な実験的データを得、ついでモデル化を進めるために、測定が容易で、微量なイオンとして扱うことができる放射性陽イオンについて研究を行うことにし、1価の陽イオンとして ^{22}Na と ^{137}Cs を、2価の陽イオンとして ^{54}Mn 、 ^{60}Co 、 ^{65}Zn 、 ^{85}Sr および ^{133}Ba を目的核種とした。なお ^{90}Sr については特に半減期が28年と長く実験廃棄物の処理処分の点から ^{90}Sr の挙動を調べる諸実験では短半減期の ^{85}Sr を使用した。なお、コロイド的挙動を示すものについては取扱いが複雑になるので、この章では取扱わない。

第2節 微量放射性陽イオンの交換吸着体への分配におよぼす Ca^{2+} の影響

2-1 はしがき

微量放射性陽イオンの土砂への分配におよぼす地下水中陽イオンの影響を知るためには、地下水中の溶存成分の中で主成分となっている Na^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} の個々の影響を調べるのが重要である。これらの非放射性陽イオンの土砂への交換吸着の様子は

必ずしも明らかでないので、スチレンベースイオン交換樹脂への交換吸着の様子が参考になると考えて、本節においては、スチレンベースイオン交換樹脂の場合に一番交換順位が高い⁵⁾ Ca^{2+} のみの影響について実験的研究を行った。

すなわち、本節においては、土砂（交換吸着体）の有する交換吸着の座はすべて Ca^{2+} で占められており、さらに地下水中には非放射性陽イオンとしては Ca^{2+} のみが存在し、他の非放射性陽イオンは共存しないというように単純化して考えた地下帯水層中で、微量の放射性陽イオンが混入した地下水が流れる場合の放射性陽イオンの分配現象、すなわち分配係数値の変化について実験的研究を行った。

実験の手順としては、まず交換吸着体の交換吸着の座を Ca^{2+} のみで占有させる、すなわちカルシウム飽和交換吸着体の作成を行い、つぎに交換吸着体に接する液中の Ca^{2+} 濃度を一定とした条件下で、カルシウム飽和交換吸着体に対する、各種の放射性陽イオンの分配係数値を、交換体に接する液中の放射性陽イオンの濃度を 2 けた程度変化させて求めた。

最後に、交換吸着体に接する液中の Ca^{2+} 濃度を 5 ～ 2,000 ppm まで変化させて、カルシウム飽和交換吸着体に対する、各種の放射性陽イオンの分配係数値の変化を求めた。

2-2 実験の方法および結果

2-2-1 実験に使用した放射性陽イオンと交換吸着体

実験に用いた放射性陽イオンは ^{22}Na 、 ^{137}Cs 、 ^{54}Mn 、 ^{60}Co 、 ^{65}Zn 、 ^{85}Sr 、 ^{133}Ba の 7 種で、これらは表 I-2-1 に示すように購入したものをまず、少量の純水で希釈し、ついでこれらの希釈液を実験用水の量に応じて数 ml ずつ実験用水に加えて、目的の放射能濃度に調整した。

交換吸着体としては、グリーンサンドおよび京都大学原子炉実験所構内地下帯水層（地表より約 150 ～ 200 m）より採取した砂（以下 KUR 砂と呼ぶ）の 2 種を使用した。

2 種の交換吸着体の特性は表 I-2-2 に示した。グリーンサンドは粘土鉱物で砂に近い性質を持つ代表的なものとして使用し、KUR 砂は表 I-2-2 でも明らかに、一般的な地下帯水層を構成する砂の 1 つとして使用した。

表 I - 2 - 1 実験に用いた放射性陽イオン

放射性 陽イオン 名	入 手 時					希 釈 法
	放射能 (mCi)	放射能濃度 (mCi/ml)	比放射能 (mCi/mg)	化学式	溶 液	
^{22}Na	0.1	0.2	carrier free	NaCl	H_2O	純水を用いて全量 を 30ml とした
^{137}Cs	1	2.5	carrier free	CsCl	0.5 N-HCl	純水を用いて全量 を 100ml とした
^{54}Mn	0.1	3.14	carrier free	MnCl_2	0.5 N-HCl	純水を用いて全量 を 30ml とした
^{60}Co	1	9.6	136	CoCl_2	0.5 N-HCl	純水を用いて全量 を 100ml とした
^{65}Zn	1	16.9	3.38	ZnCl_2	0.5 N-HCl	純水を用いて全量 を 100ml とした
^{85}Sr	1	32	10	SrCl_2	0.5 N-HCl	純水を用いて全量 を 100ml とした
^{133}Ba	0.1	8.67	2.34	BaCl_2	0.5 N-HCl	純水を用いて全量 を 30ml とした

表 I - 2 - 2 実験に用いた交換吸着体

交換吸着体	材 質	粒 経 (mm)	交換容量 (meq/g)	比 重
グリーンサンド	鉍 物	1.19 ~ 0.590	0.15	2.48
KUR 砂	鉍 物	0.125 ~ 0.250	0.031	2.47

ただし交換容量は硝酸カルシウムの 20,000 ppm 溶液 (as Ca^{2+})
を用いて Ca^{2+} の吸着量より求めた

2 - 2 - 2 交換吸着体のカルシウム化

使用する交換吸着体には、 Ca^{2+} が大部分であると推定されるが、その他の種々の陽イオンが吸着されていると考えられるので、これらのイオンを Ca^{2+} に置き換えるために、つぎのような方法で、交換吸着体のカルシウム化を行った。

200ml 用のビーカーに各交換吸着体を 3g ずつ取り、それらに 20,000 ppm (Ca^{2+} として) カルシウム溶液を約 150ml ずつ添加した (添加溶液に含まれるカルシウム量は、、、表 I - 2 - 2 に示したように交換容量が大きいグリーンサンドの交換吸着の座をみた

すに必要なカルシウム量の約 300 倍に相当する)。

カルシウム溶液は、純水中に所定量の硝酸カルシウム ($\text{Ca}(\text{NO}_3)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$) を溶かしてカルシウム重量を基準にして作成したもので、本節の実験に使用した種々の濃度のカルシウム溶液はすべて硝酸カルシウムである。

ときどき攪拌しながら約 2 時間放置し、ついで溶液を流し出し、再び 20,000 ppm カルシウム溶液 150 ml を添加して、さらにときどき攪拌 (24 時間の中でほぼ等時間隔で 10 回) し、24 時間放置した。

ついでカルシウム溶液を傾斜法で流し出し、約 150 ml の純水で洗浄し、洗浄水を傾斜法で流し出すという操作を計 3 度繰り返した。

3 度目の洗浄水中の Ca^{2+} 濃度を EDTA 法⁶⁾で測定すると、 Ca^{2+} はほとんど検出されなかったが、交換吸着体細部の空隙水の洗浄には時間が必要であると考え、再び純水を 150 ml 程度添加し、ときどき攪拌した後、24 時間放置し、その溶液中の Ca^{2+} 濃度を EDTA 法で測定し、再び純水を 150 ml 程度添加し、同じ操作を繰り返して Ca^{2+} 濃度を測定した。測定結果は表 I-2-3 に示す。

表 I-2-3 によれば、各交換吸着体ごとに共通して 1 回目は、洗浄液中に Ca^{2+} が検出され、しかも洗浄液量と Ca^{2+} 濃度とがほぼ反比例、すなわち洗浄液中の Ca^{2+} 量はほぼ一定であることがわかった。そして 2 回目以降は、各交換吸着体に関して共通して洗浄中に Ca^{2+} が検出されないことがわかった。

表 I-2-3 交換吸着体の洗浄試験

回 数	グリーンサンド		KUR 砂	
	洗浄液量 (ml)	Ca^{2+} 濃度 (ppm)	洗浄液量 (ml)	Ca^{2+} 濃度 (ppm)
1 回目	131.3	16.4	133.4	1.5
	166.3	11.5	164.2	1.1
2 回目	130.5	< 1	135.5	< 1
	168.1	< 1	180.2	< 1
3 回目	129.9	< 1	133.1	< 1
	167.3	< 1	175.5	< 1

この結果、24 時間経過すれば交換吸着体細部の空隙水は、ほぼ洗浄しおえることがわかったので、24 時間経過直後にさらに 150 ml の純水で最終回の洗浄を行い、この洗浄水を流し出した後に、一部残留した洗浄水を除去するため減圧乾燥器中で乾燥させて、交換吸着体のカルシウム化操作を終了した。

この操作により、どの交換吸着体の交換吸着の座も Ca^{2+} で置き換ったものと考えら

れるが、この方法で置き換え現象が完全に行われたどうかを確認するため、1N食塩水を用いて Ca^{2+} を交換吸着の座より追い出し、追い出された Ca^{2+} 量をEDTA法⁶⁾で求めた。この値を本章、次節3-2-1, 3-2-2で詳しく述べるカラムによる通水実験⁷⁾によって交換吸着体に吸着された Ca^{2+} 量と比較すると一致したので、前記バッチ法でカルシウム化が完全に行われたものとした。

2-2-3 分配係数値の測定(1) カルシウム量一定の場合

交換吸着体と接する液中の Ca^{2+} 濃度が一定のときには、接液中に共存する微量放射性イオンAの濃度 C_A と交換吸着体に分配された放射性陽イオンAの分配濃度 q_A との比を示す分配係数 Kd_A は

$$Kd_A = q_A / C_A \quad (I-2-1)$$

で示され、しかも Kd_A は C_A の濃度がきわめて低い場合には一定値を示すと一般にはみなされている⁸⁾。

そこで、この現象を確認するために、本節2-2-1で述べた7種の放射性陽イオンについて、同じく前述した2種の交換吸着体を用いて、交換吸着体と接する液中の Ca^{2+} 濃度を一定とし、各放射性陽イオンの液中濃度を変化させて、カルシウム飽和交換吸着体に対する放射性陽イオンの分配係数値を求めた。

まず20ppm(Ca^{2+} として)のカルシウム溶液を作成して、この液の中へ各放射性陽イオンを別々に、しかも数種類の濃度になるように適量を加えて原水(交換吸着体と接触させるために作成した溶液を、本節では今後簡単にこのように表現することにした)を作成した。

原水の放射能濃度は、各放射性陽イオンについてはNaIシンチレーションカウンタで測定し、約10,000 cpm/mlから約100 cpm/ml(約 $1 \times 10^{-1} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ から約 $1 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ 、ppm表示で最高約 1×10^{-2} ppmから約 1×10^{-4} ppm)までの5段階になるように調整した。

つぎに、カルシウム化した交換吸着体を3gずつ200ml用のビーカーにとり、この中へ各種原水を添加して、ときどき攪拌し、交換吸着体と原水とを24時間接触させた。添加した原水の量は150ml程度で正確な量は重量測定で求めた。この間の室温は20℃～25℃を保つように調節した。

24時間経過すれば、分配現象は十分に平衡に達していると考えられるので⁸⁾、ろ紙（東洋ろ紙 No. 4）を用いて液と交換吸着体との分離を行った。なお、分配現象が平衡に達するまでの時間を測定するため、別に前述したのと同条件の試料を作成し、一定時間毎に上澄液中の放射能濃度を測定した。結果の一部を図 I-2-1 に示した。図 I-2-1 は、 ^{60}Co および ^{85}Sr の KUR 砂に関する分配現象を示したもので、横軸は経過時間を、たて軸は上澄液濃度を原水濃度で除した値を示した。図 I-2-1 より明らかに ^{60}Co 、 ^{85}Sr とも 4 時間ほどで十分に平衡に達するのが確認できた。また図には示さなかったが各イオンとも各交換吸着体について 4 時間ほどで十分に平衡に達することが確認できた⁹⁾。

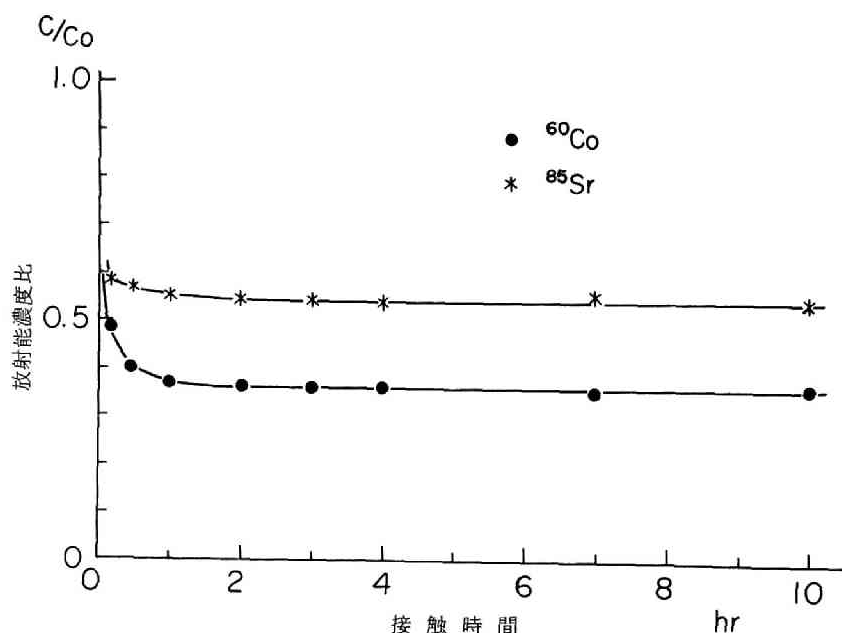


図 I-2-1 分配現象が平衡に達するまでの時間

ろ液のうち 2 ml を用いて放射能濃度を測定し、残りのろ液で Ca^{2+} 濃度を測定した。放射能濃度の測定には、各陽イオンとも NaI シンチレーションカウンタを用いた。交換吸着体に分配された放射性陽イオンの量は、原水放射能濃度とろ液放射能濃度との差から計算で求めた。また、ろ紙による放射性陽イオンの吸着をみるために、原水をろ過し、ろ過前後の放射能濃度を比較した。結果を表 I-2-4 に示した。表 I-

2-4からは各放射性陽イオンともろ過前後の放射能濃度に差が認められなかったので、各放射性陽イオンとも、ろ紙による吸着はないものとした。なお、比較のため、ラジオコロイドを作成するといわれる ^{110m}Ag についても同様の実験を行い、表I-2-4に併記したが、ろ紙を通過するだけで約65%の ^{110m}Ag が、除去されることがわかった。

ろ液の Ca^{2+} 濃度はEDTA法で測定したが、原水とろ液との Ca^{2+} 濃度は分配実験の前後で変化しなかった。また、pHは原水、ろ液ともに5.5~6.5の間であった。

Ca^{2+} 濃度が20ppm(Ca^{2+} として)のときの放射性陽イオンの分配係数値を(I-2-1)式より求めて、各交換吸着体ごとに図I-2-2、図I-2-3に示した。

図I-2-2 図I-2-3はそれぞれグリーンサンド、KUR砂に関するもので、両図とも横軸に平衡時の放射性陽イオンの液中濃度(ろ液の放射能濃度)を対数目盛で、たて軸に分配係数値を普通目盛で表わした。

両図から明らかに、液中の放射能濃度を約2桁変化させても、 Ca^{2+} 濃度が一定であれば、放射性陽イオンの分配係数値は各イオンごと、各交換吸着体ごとにほぼ一定値を示した。

2-2-4 分配係数値の測定(2) カルシウム量を変化させた場合

本節2-2-3の実験の結果、放射性陽イオンの分配係数値は液相中の放射性イオン濃度に関係なく、ほぼ一定値を示すことがわかったので、つぎに液相中の Ca^{2+} 濃度を変化させたときの分配係数値の変化を実験で求めた。

まず、 Ca^{2+} 濃度が、約5, 15, 50, 150, 500, 2,000 ppm(Ca^{2+} として)の6種のカルシウム溶液を作成した。これらの溶液の中へ、前述の7種の放射性陽イオンをそれぞれ約 $10^{-2}\mu\text{Ci}/\text{ml}$ の濃度になるように、別々に入れて計42種の原水を作成した。

つぎに前述の2種の交換吸着体を、それぞれカルシウム化したものを3gずつビーカーに入れ、ここへ前述の42種の原水を別々に約150ml添加した。

表I-2-4 放射性陽イオンのろ紙による吸着の有無

放 射 性 陽 イ オン	放射能濃度cpm/ml	
	ろ 過 前	ろ 過 後
^{22}Na	1238	1253
^{137}Cs	52	50
^{54}Mn	399	385
^{60}Co	1310	1297
^{65}Zn	1028	1042
^{85}Sr	2414	2460
^{133}Ba	434	438
(^{110m}Ag)	(678)	(238)

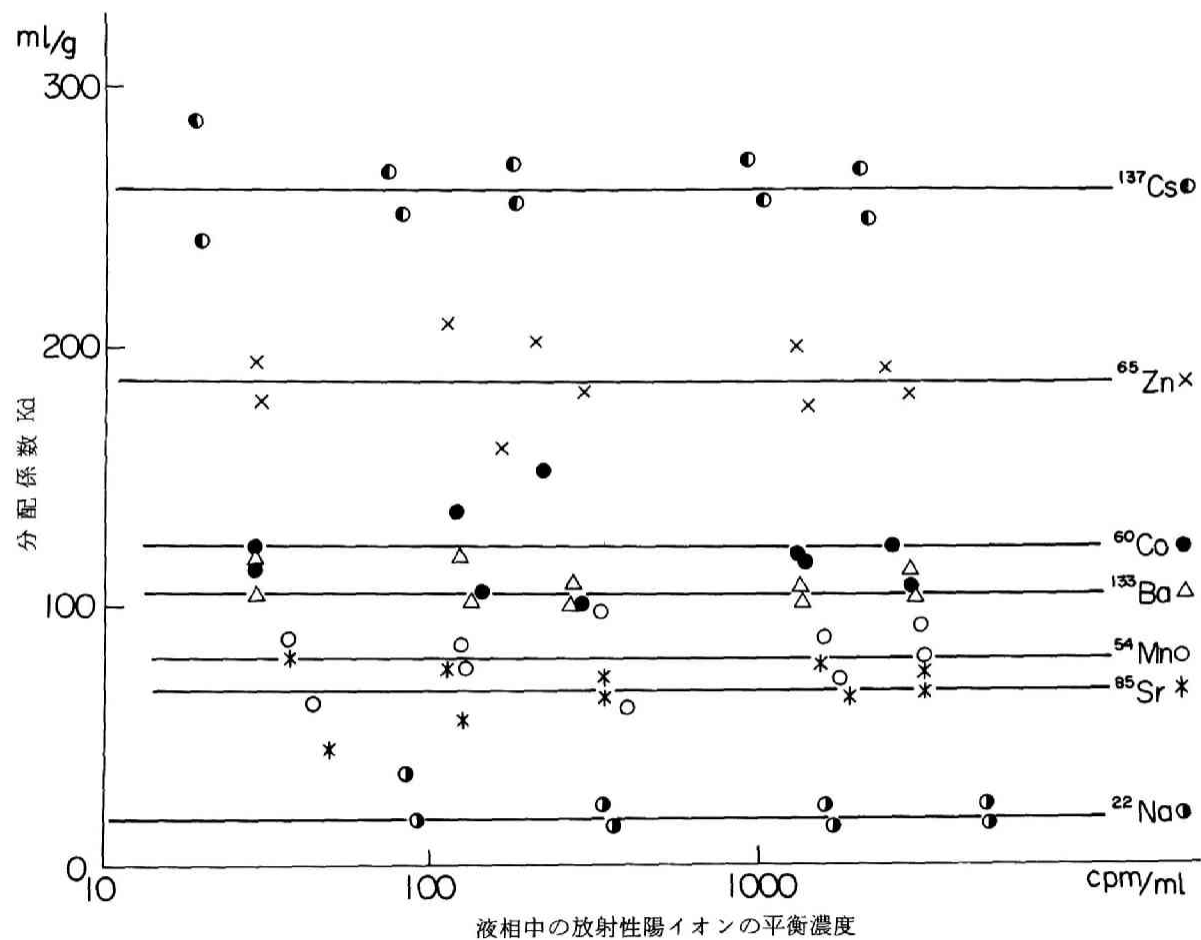
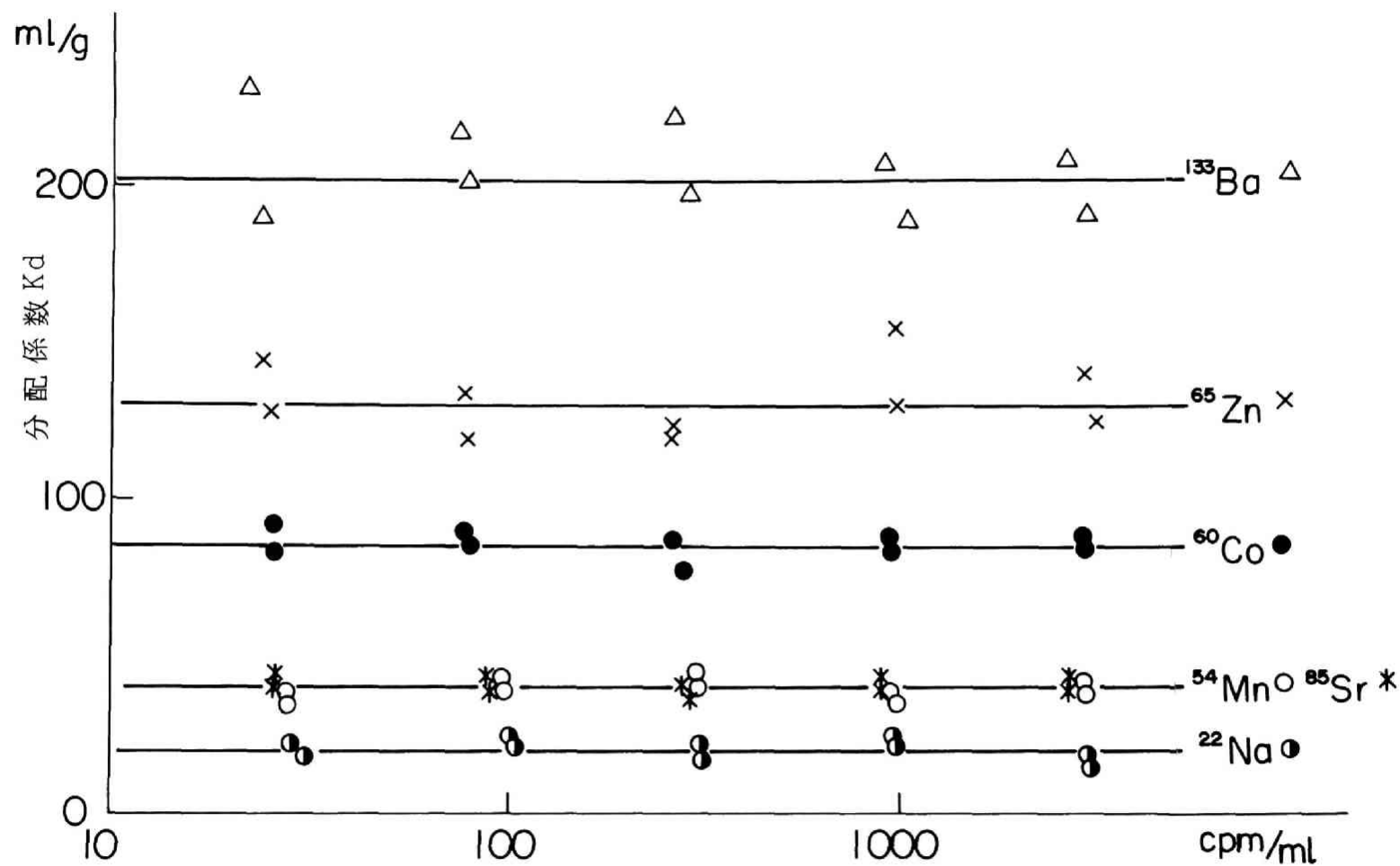


図 I - 2 - 2 グリーンサンドに対する放射性核種の分配係数値



液相中の放射性陽イオンの平衡濃度
 図 I - 2 - 3 KUR 砂に対する放射性核種の分配係数値

本節 2-2-3 と同じ方法で実験を行い、24 時間後に、ろ液の放射能濃度と Ca^{2+} 濃度とを測定した。このときろ液の pH は 5.5 ~ 6.5 であった。一般に pH 4 ~ 10 程度の間では、空気中の炭酸ガスが水中に溶解込み Ca^{2+} と反応して、炭酸カルシウムが沈殿するといわれているが¹⁰⁾、本実験においては表 I-2-5

表 I-2-5 カルシウム飽和交換吸着体の溶出実験

原水 Ca^{2+} 濃度 (ppm)	24 時間経過後 Ca^{2+} 濃度 (ppm)	
	グリーンサンド	KUR 砂
5.6	5.6	5.6
10.4	10.4	10.4
105	105	103
532	532	534
1870	1870	1880

に示すように、原水と、24 時間経過後のろ液の間には、 Ca^{2+} 濃度の変化は、ほとんど見られなかった。

本節 2-2-3 と同様にして、交換吸着体へ分配された放射性陽イオンの分配量を求め、この値から (I-2-1) 式の分配係数値 K_{dA} を計算して、結果を交換吸着体ごとにまとめて、図 I-2-4、図 I-2-5 に示した。

両図とも横軸に Ca^{2+} 濃度を、工学的見地から実用度の高い ppm ($1 \text{ ppm} = 5 \times 10^{-5} \text{ meq/ml}$) 単位を用いて、対数目盛で表示した。また分配係数値も Ca^{2+} 濃度に影響され大きく変動するので、たて軸に対数目盛で示した。

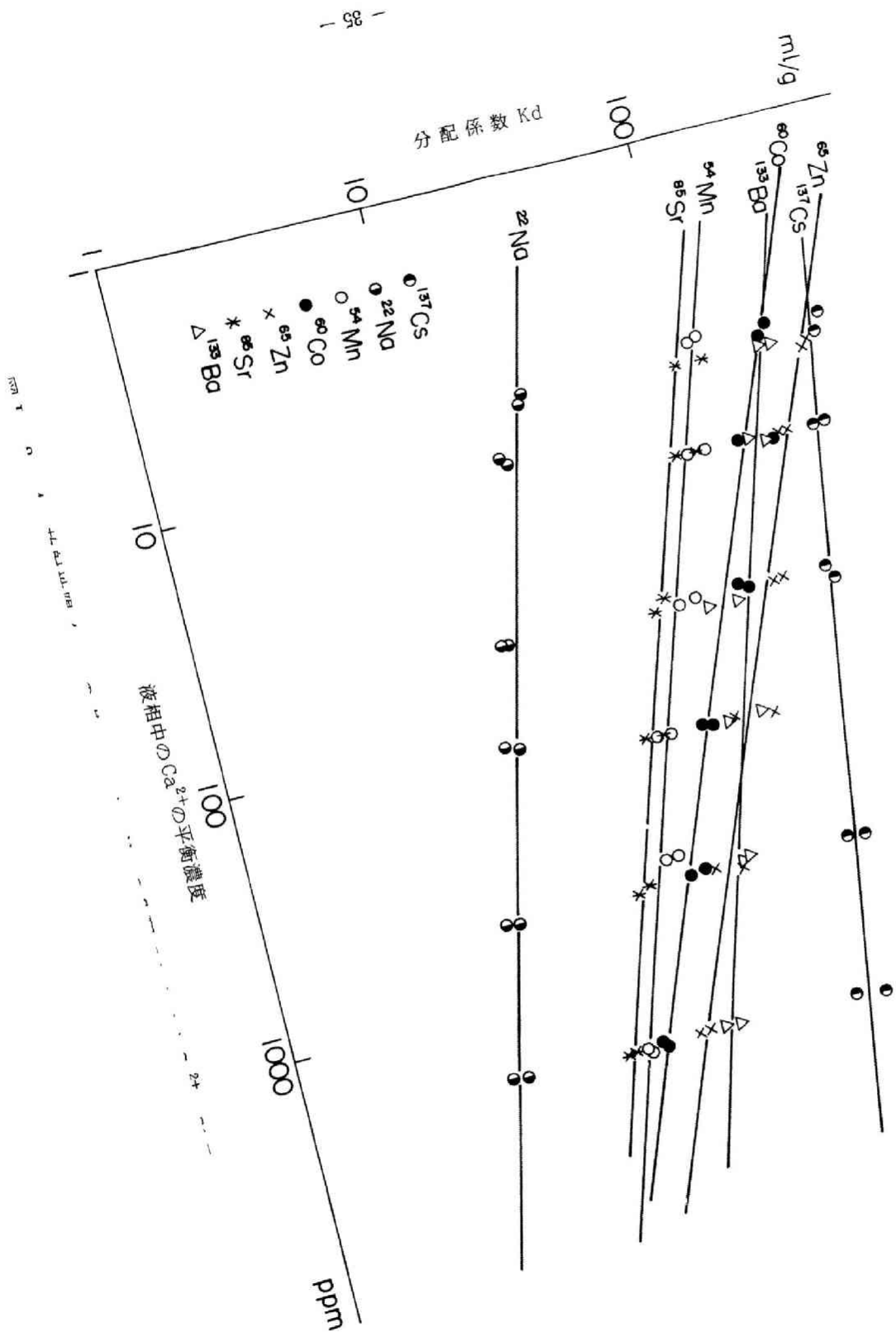
図 I-2-4 はグリーンサンドについて表わしたものであるが、各放射性陽イオンの分配係数値 K_{dA} と Ca^{2+} 濃度との関係は、ほぼ直線関係にあることが明らかになった。また図 I-2-5 は KUR 砂についてのものであるが、図 I-2-4 と同様に、分配係数値と Ca^{2+} 濃度との間には直線関係が読みとれた。

この結果、つぎの実験式が得られた。

$$K_{dA} = m \cdot (C_{\text{Ca}})^{-n} \quad (\text{I-2-2})$$

ただし、 m , n は、主成分イオンのカルシウムと微量放射性陽イオンとの 2 成分系分配現象において、放射性陽イオンおよび交換吸着体の種類によって定まる値である。また C_{Ca} は液相中の Ca^{2+} の濃度である。

なお、(I-2-2) 式は本編第 1 章、(I-1-25) 式の質量作用定数 K より誘導できる分配係数を示す理論式とは同じ型式をしているが、同じものではない。すな



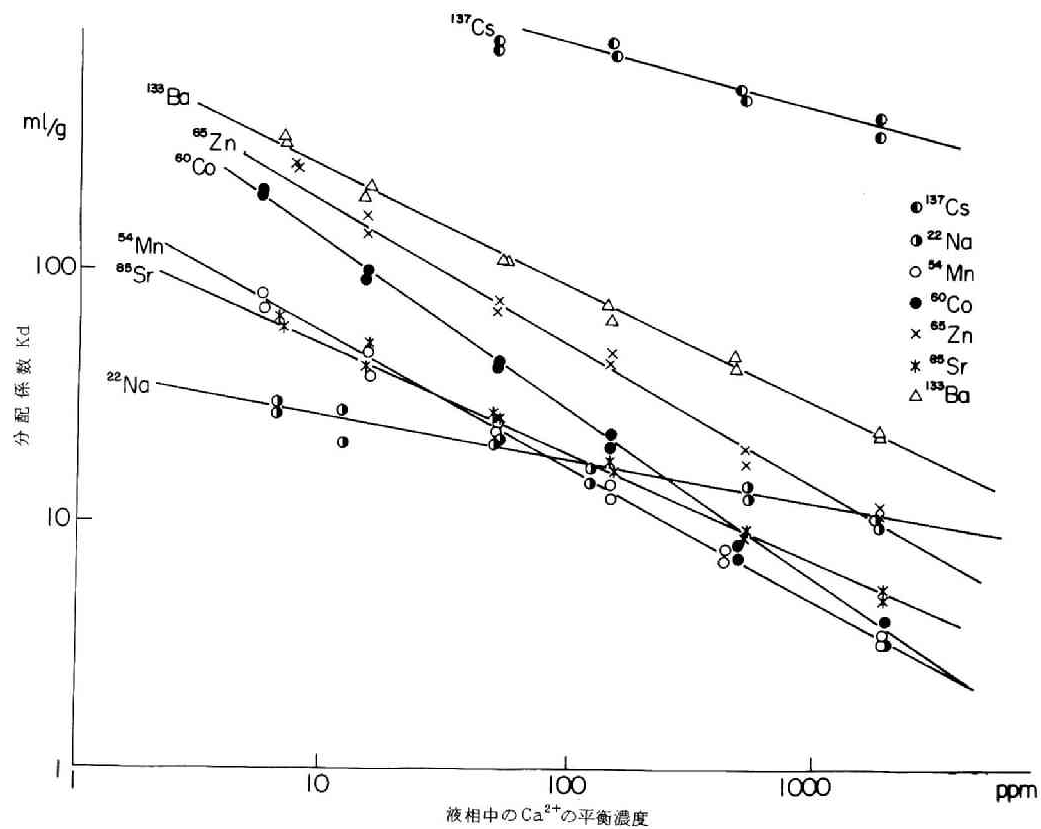


図 I - 2 - 5 放射性陽イオンの KUR 砂への分配におよぼす Ca^{2+} の影響

わち (I - 1 - 25) 式より分配係数は

$$Kd_A = \frac{q_A}{C_A} = K^{\frac{1}{b}} \cdot q_{Ca}^{\frac{a}{b}} \cdot C_{Ca}^{-\frac{a}{b}} \quad (I-1-25')$$

となり、かりに (I - 2 - 2) 式と (I - 2 - 25') 式とが、同じものだとすれば、
 (I - 2 - 2) 式の m 値、n 値はそれぞれ $K^{\frac{1}{b}} \cdot q_{Ca}^{\frac{a}{b}}$, $-\frac{a}{b}$ となる。まず n 値について
 検討すると a, b はそれぞれ放射性陽イオンおよび Ca^{2+} のみかけの電荷の数であるので、
 n 値は放射性陽イオンのみかけの電荷の数が 2 の場合は 1、電荷の数が 1 の場合は
 0.5 となる。ところで n 値は図 I - 2 - 4、図 I - 2 - 5 に示した直線の勾配を示す
 が、両図に描かれたどの直線の勾配も 1 または 0.5 を示さない。正確な n 値は表 I
 - 2 - 6 で後述するが、2 価の放射性陽イオンの場合で 0.3 ~ 0.65, 1 価の放射性陽
 イオンの場合で 0.15 ~ 0.25 と (I - 2 - 25') 式から得られる n 値とは大きく異なる。
 また m 値についても、 $K^{\frac{1}{b}} \cdot q_{Ca}^{\frac{a}{b}}$ のうち、 q_{Ca} はほぼ交換容量に等しいと考えられるの
 で交換容量を q_{max} とすれば、 $K^{\frac{1}{b}} \cdot q_{max}^{\frac{a}{b}}$ となり明らかに交換容量の値が大きく影響す
 るはずであるが、図 I - 2 - 4, 図 I - 2 - 5 を比較してみても、グリーンサンドと
 KUR 砂との間の交換容量の比 5 : 1 の影響は見い出せない。

したがって (I - 2 - 2) 式は放射性陽イオンの土砂への分配に対する Ca^{2+} の影響
 の程度を定量化するため工学的見地から求めた実験式である。

2 - 3 結果の考察

前項 2 - 2 の実験結果から実験式 (I - 2 - 2) 式が求められたが、Routson¹¹⁾
 も ^{241}Am の分配係数の変化を、交換吸着体として South Carolina Subsoil を用い
 て、 Ca^{2+} および Na^{+} に関して求めており、実験結果は図 I - 2 - 6 に示すように (I
 - 2 - 2) 式と同じ傾向を示している。

そこで、交換吸着体ごとに、図 I - 2 - 4、図 I - 2 - 5 より、(I - 2 - 2) 式
 中の m 値、n 値を各放射性陽イオンについて計算した。ただし (I - 2 - 2) 式は実
 験式であるので、m, n 値を計算するにあたっては、 Kd_A , C_{Ca} の数値を表示する単位
 を定めておく必要があり、 Kd_A については ml/g , C_{Ca} については ppm を使用した。し
 たがって (I - 2 - 2) 式の m 値は、 Ca^{2+} 濃度が 1 ppm のときの分配係数値を示して
 いることになり、一般的には m 値が大きいほど分配されやすいといえる。計算結果は
 各放射性陽イオンのみかけの電荷の数、水和イオン半径¹²⁾とともに表 I - 2 - 6 に示した。

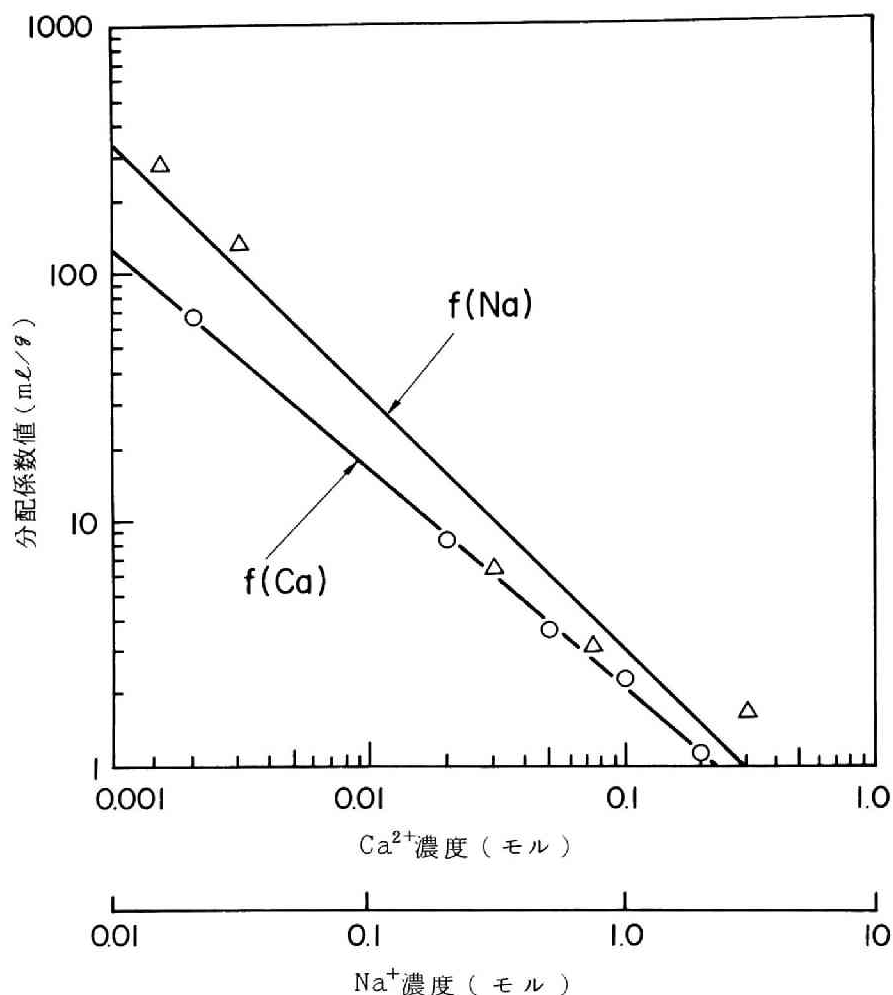


図 I - 2 - 6 ^{241}Am の South Carolina Subsoil への分配¹¹⁾

一般にイオン交換吸着の場合、等価のイオンでは水和イオン半径が小さいほど良く吸着し、異価イオン間ではみかけの電荷の数が大きいほど良く吸着する⁵⁾といわれているので、これらの観点から表 I - 2 - 6 を検討してみる。

^{22}Na と ^{137}Cs はともに I・a 族に属する 1 価の金属イオンで、 ^{85}Sr と ^{138}Ba はともに II・a 族に属する 2 価の金属イオンであるが、同族イオンどうしの n 値は、同一交換吸着体については同じような値を示しており、同族イオンどうしの m 値に関しては、どの交換吸着体についても水和イオン半径の小さな方が、 m 値が大きいという傾向がみ

表 I - 2 - 6 放射性陽イオンの m, n 値

放 射 性 陽イオン	グリーンサンド		KUR砂		水 和 イオン半径 (Å)	みかけの 電荷の数	族
	m 値	n 値	m 値	n 値			
^{22}Na	38	0.25	40	0.17	1.87	+1	I a
^{137}Cs	410	0.15	3000	0.26	1.27	+1	I a
^{54}Mn	200	0.32	200	0.53	4.66	+2	VII b
^{60}Co	410	0.38	640	0.67	4.66	+2	VIII
^{65}Zn	600	0.40	700	0.57	4.66	+2	II b
^{85}Sr	170	0.31	140	0.43	4.10	+2	II a
^{133}Ba	350	0.29	780	0.48	3.86	+2	II a

ただし m, n 値は分配係数、 Ca^{2+} 濃度値をそれぞれ ml / g, ppm
で表示した時の値

られた。

^{54}Mn と ^{60}Co と ^{65}Zn とはそれぞれ属する族が異なる 2 価の遷移金属イオンであるため、同族イオン同士のような比較はできない。しかし大まかに 2 価の遷移金属イオンという観点から見れば、m 値、n 値とも同一交換吸着体については、わりあい似た値を示しており、特に m 値は水和イオン半径が少し小さい ^{85}Sr よりも大きいことがわかった。

また、みかけの電荷の数という観点からみれば、2 価の 5 つのイオンの方が水和イオン半径がずっと大きいにもかかわらず、1 価の ^{22}Na よりも m 値が大きい、すなわち土の方に多く分配されることがわかった。また、 ^{137}Cs は 1 価のイオンであるにもかかわらず大きな値を示したが、これまで多くの研究者によって粘土鉱物に対する ^{137}Cs の特異吸着として説明されている現象と合致している。n 値に関しては、全般的に 2 価のイオンの方が 1 価のイオンよりも大きい、すなわち Ca^{2+} 濃度による影響を受けやすいことがわかった。

交換吸着体の種類が m 値、n 値に与える影響について検討を加えてみる。グリーンサンドと KUR 砂の各々の交換容量の比は表 I - 2 - 2 から明らかなように 5 : 1 程度であるのに両者の m 値には大小が認められず、n 値についても KUR 砂の方がやや大きい程度であることがわかった。このことから粘土鉱物の m 値、n 値には交換容量だけでなく、粘土鉱物特有の選択吸着性も影響しているように思われる。

2-4 結 論

本節では、地下帯水層における放射性陽イオンの挙動を推測するのに重要な、放射性陽イオンの分配係数値について、実験的研究を行った。放射性陽イオンの分配係数値には、地下水中の種々の非放射性陽イオンが影響を与えることが予測されたが、本節ではそのうち Ca^{2+} のみに注目して、主成分が Ca^{2+} で、微量成分が放射性陽イオンであるという2成分系について実験的研究を行った。

実験には、放射性陽イオンとして、 ^{22}Na 、 ^{137}Cs 、 ^{54}Mn 、 ^{60}Co 、 ^{65}Zn 、 ^{86}Sr 、 ^{138}Ba を用い、交換吸着体としてグリーンサンド、KUR砂を用いた。

まず、はじめに交換吸着体の交換吸着の座を Ca^{2+} で占有させるカルシウム化の方法について述べた。

つぎに、液相中の Ca^{2+} 濃度を一定とした条件下で、カルシウム飽和交換吸着体に対する各種の放射性陽イオンの分配係数値を、放射性陽イオンの濃度を約2桁変化させて測定したが、微量な放射性陽イオンの濃度を変化させても、分配係数値は変化しないことを確めた。

そこで、液相中の Ca^{2+} 濃度を変化させて放射性陽イオンの分配係数値を調べた結果、実験式として、

$$K_{dA} = m \cdot (C_{\text{Ca}})^{-n} \quad (\text{I-2-2})$$

を得た。

そこで (I-2-2) 式の m 値、 n 値について検討した結果、放射性陽イオンのみかけの電荷の数、水和イオン半径、所属する族および交換吸着体の種類などが m 値、 n 値に大きな影響を与えることを知った。

第3節 微量放射性陽イオンの交換吸着体への分配におよぼす地下水中陽イオンの個々の影響

3-1 はしがき

本章前節において、地下水中には非放射性成分として Ca^{2+} のみが存在すると単純化して考えた地下帯水層中で微量の放射性陽イオンが混入した地下水が流れる場合の放射性陽イオンの分配現象、すなわち分配係数値の変化について実験的研究を行った。

そこで本節では、地下水中の溶存陽イオンの大部分をしめる Ca^{2+} 以外の溶存イオンでしかも地下水中に ppm 程度の濃度で存在する非放射性陽イオン Mg^{2+} や Na^{+1}) などが、微量な放射性陽イオンの分配現象にどのような影響力を持つか、またその影響力が Ca^{2+} と比較してどの程度のものであるかなど影響の程度を定量化するために実験的研究を行った。

まず、分配現象を比較する上で重要な交換吸着体の交換吸着の座の数が測定に用いる陽イオンによって変化するか否かを調べるために、数種類の陽イオンを用いて、交換吸着体の交換容量を測定し比較した。

つぎに、マグネシウムおよびナトリウム飽和交換吸着体に対する放射性陽イオンの分配実験を行い、放射性陽イオンの分配係数値と液相中の Mg^{2+} および Na^{+} との関係を求めた。

最後に Ca^{2+} と Mg^{2+} と Na^{+} との放射性陽イオンの分配に対する影響力の比較を行い、放射性陽イオンの分配に与える影響を研究するのに必要な地下水中に含まれる陽イオンを求めた。

3-2 交換吸着体の交換容量の測定

交換吸着体の吸着の座の数を示す単位として交換容量（普通は meq/g で表わす）がある。交換容量を測定する時には、特定の陽イオンのみを含む溶液と交換吸着体を接触させ、交換吸着体の吸着の座を特定のイオンで可能な限り占有させて、占有した特定のイオンの量を測定することによって交換容量を計算している。

そこで本項でも交換吸着体の座の数を種々の陽イオンで測定して比較することにした。

実験には交換吸着体の吸着の座を占有させるイオンとして、地下水中に含まれる溶存陽イオンの大部分をしめる Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Na^{+} と土壌の交換容量を測定するのに標準法として使用する $\text{NH}_4^{+13)}$ と粘土鉱物への特異吸着で知られる Cs^{+} とを使用した。また交換吸着体としてはグリーンサンド、KUR砂を使用した。

3-2-1 実験方法

(1) NH_4^{+} による測定（酢酸アンモニウム法）¹³⁾

本法はバッチ法で交換吸着体を NH_4^{+} で飽和させたのち加熱分解で NH_3 を追い出し、追い出された NH_3 を定量して算出する方法である。

すなわち交換吸着体と 1 N 酢酸アンモニウム溶液とをビーカーに入れ、スチームバス内で 2 時間程度接触させ、つぎに酢酸アンモニウム溶液を流し出し、さらに空隙中の酢酸アンモニウム溶液をメチルアルコールで洗浄した。アンモニウム化された交換吸着体を蒸留水とともにケルダールフラスコに入れ酸化マグネシウムを添加して煮沸した。煮沸することによって交換吸着体に吸着された NH_3 が離脱し溜出するので飽和ホウ酸水で NH_3 を捕集した。最後に捕集した NH_3 をメチルレッド―ブロムクレゾールグリーンを指示薬として滴定して定量し、交換吸着体に吸着された NH_4^+ 量を求めて交換容量の計算を行った。

(2) Ca^{2+} による測定

本法はカラム法で交換吸着体を Ca^{2+} で飽和させた後、 Na^+ で Ca^{2+} を追い出し、溶出した Ca^{2+} 量を定量して算出する方法である。

すなわち交換吸着体をカラムにつめ、定濃度の硝酸カルシウム溶液 (1 N と 0.01 N の 2 種類) をカラム上部から通水し、カラムの出入口での溶液の Ca^{2+} 濃度が等しくなるまで通水を続けた。この結果交換吸着体のカルシウム化が終了したので、カラム上部から純水を通水し、カラム下部で採水した水から Ca^{2+} が検出されなくなるまで通水を続け、カラム内の空隙水中の Ca^{2+} を除去した。最後に 1 N 食塩水をカラム上部より通水し、 Ca^{2+} が Na^+ によって追い出されるので、カラム出口で採取した水に Ca^{2+} が検出されなくなるまで通水を続け、この時カラム下部より流出したすべての溶液中の Ca^{2+} 量を EDTA 法⁶⁾で測定して、交換容量の測定を行った。

(3) Mg^{2+} による測定

本法はカラム法で交換吸着体を Mg^{2+} で飽和させた後 Na^+ で Mg^{2+} を追い出し、溶出した Mg^{2+} 量を定量して算出する方法である。

すなわち定濃度の硝酸マグネシウム溶液 (1 N と 0.01 N の 2 種類) を用いて前述 (2) の Ca^{2+} による測定と同様な操作を行い、 Mg^{2+} の定量は EDTA 法で行い⁶⁾、交換容量を計算した。

(4) Na^+ による測定

本法はカラム法で交換吸着体を Na^+ で飽和させた後、 Ca^{2+} で Na^+ を追い出し、溶出した Na^+ 量を定量して算出する方法である。

すなわち定濃度の硝酸ナトリウム(1Nと0.01Nの2種類)を用いて、前述(2)の Ca^{2+} による測定と同様な操作でカラム実験を行った。この場合にはナトリウム飽和交換吸着体から Na^+ を脱離させるために1N硝酸カルシウム溶液を使用し、 Na^+ の定量は蛍光分析法¹⁴⁾で行い交換容量を計算した。

(5) Cs^+ による測定

本法はバッチ法で、安定同位体の Cs^+ にラジオトレーサとして ^{137}Cs を添加して、吸着後の ^{137}Cs の減量を測定して算出する方法である。

すなわち交換吸着体と0.1N硝酸セシウム溶液とをビーカーに入れ24時間接触させて、24時間経過後の硝酸セシウム溶液中 Cs^+ 濃度の変化より、交換吸着体に吸着された Cs^+ 量を求めた。 Cs^+ の定量は0.1N硝酸セシウム溶液中にあらかじめラジオトレーサとして $0.1\mu\text{Ci}/\text{ml}$ 程度の濃度で ^{137}Cs を添加しておき、 ^{137}Cs の放射能濃度の変化から、交換吸着体と接触させた硝酸セシウム溶液中の Cs^+ の濃度変化を計算した。

3-2-2 実験結果および考察

本項3-2-1の実験方法により実験を行った結果、得られた各交換吸着体に対する交換容量の値を各交換吸着体ごとに表I-2-7、表I-2-8に示した。

表I-2-7 グリーンサンドの交換容量の測定

陽イオン	測定法	接 触 溶 液	接触溶液 量 ml	接触時間 hr	グリーンサ ンドの重量 g	交換容量 meq/g
NH_4^+	バッチ	1N- NH_4COOH	100	2	10	0.15
Ca^{2+}	カラム	1N- $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$	500	5	5	0.14
		0.01N- $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$	7200	72	5	0.15
Mg^{2+}	カラム	1N- $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2$	500	5	5	0.15
		0.01N- $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2$	7200	72	5	0.13
Na^+	カラム	1N- NaNO_3	500	5	5	0.12
		0.01N- NaNO_3	7200	72	5	0.14
Cs^+	バッチ	0.1N- CsNO_3	150	24	2	0.18

表 I - 2 - 8 K U R 砂の交換容量の測定

陽イオン	測定法	接 触 溶 液	接触溶液 量 ml	接触時間 hr	KUR砂の 重量 g	交換容量 meq/g
NH_4^+	バッチ	1N- NH_4COOH	100	2	10	0.034
Ca^{2+}	カラム	1N- $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$	500	5	10	0.031
		0.01N- $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$	7200	72	10	0.030
Mg^{2+}	カラム	1N- $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2$	500	5	10	0.029
		0.01N- $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2$	7200	72	10	0.031
Na^+	カラム	1N- NaNO_3	500	5	10	0.028
		0.01N- NaNO_3	7200	72	10	0.029
Cs^+	バッチ	0.1N- CaNO_3	150	24	5	0.035

表 I - 2 - 7, 表 I - 2 - 8 はそれぞれグリーンサンド、KUR 砂に関するもので、両表には実験に使用した交換吸着体の重量、交換吸着体と接触させた溶液の濃度、容積等も併せて示した。両表によれば、グリーンサンドおよび KUR 砂の交換容量はどのイオンで測定しても、同一イオンの溶液中濃度を変えても、同じような値が得られることがわかった。特に、本章第 2 節で述べたように粘土鉱物への特異吸着で知られる Cs^+ でも大量に用いて交換容量を測定すれば、他のイオンで測定したものよりもやや大きい程度でほぼ同じような値が得られた。なお Cs^+ で測定した交換容量に関しては、筒井および木村⁹⁾ が粘土鉱物のパーミキュライトについての値を報告しているが、この報告でも Ca^{2+} , K^+ , NH_4^+ で測定したものと Cs^+ で測定した交換容量はほぼ同じであると述べている。

以上の結果、両交換吸着体の交換容量で示される交換吸着の座の数は、各々の交換吸着体に固有のほぼ一定の数であると考えてさしつかえないと思われる。

3 - 3 地下水中陽イオンが分配係数におよぼす個々の影響

地下水中には種々の陽イオンが含まれているが、一般的に地下水に主として含まれる陽イオンは Ca^{2+} および Mg^{2+} および Na^+ であり、某原子力施設構内地下帯水層より採取した地下水の水質を分析した結果を表 I - 2 - 9¹⁾ に示した。この分析例でも明らかに Ca^{2+} , Mg^{2+} および Na^+ が主要なものとなっている。そこで本項ではこれらの 3 種

のイオンごとに別々に飽和交換

表 I - 2 - 9 地下水の分析例

吸着体を作成し、飽和交換吸着体に対応するイオンのみが種々の濃度で存在する溶液に微量の放射性陽イオンを添加したものをを用いて、放射性陽イオンの分配実験を行い、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} および Na^{+} のそれぞれが放射性陽イオンの分配現象におよぼす影響について比較した。

放射性陽イオンとしては本章第2節と同じように ^{22}Na 、 ^{137}Cs 、 ^{54}Mn 、 ^{60}Co 、 ^{65}Zn 、 ^{85}Sr 、 ^{133}Ba

酸消費量	pH 6.2	有機リン	0.0 ppm
濁り	9	銅	0.1 ppm
硬度	56 ppm	鉄	0.1 ppm
蒸発残留物	130 ppm	カリウム	3.1 ppm
塩素イオン	60 ppm	ナトリウム	31.6 ppm
アンモニア性窒素	0.13 ppm	カルシウム	10.6 ppm
亜硝酸性窒素	0.00 ppm	マグネシウム	8.2 ppm
硝酸性窒素	2.11 ppm	鉛	0.0 ppm
ヒ素	0.00 ppm	亜鉛	0.03 ppm
水銀	0.00 ppm	クロム	0.0 ppm
マンガン	0.01 ppm		

を使用した。これらの放射性陽イオンの化学的特性は本章第2節で詳しく述べたので本項では省略する。また交換吸着体も本章第2節の実験と同じものを用いた。

3-3-1 実験方法

(1) Ca^{2+} の影響

各交換吸着体のカルシウム化の方法およびカルシウム飽和交換吸着体に対する各放射性陽イオンの分配実験の方法については、本章第2節で詳しく述べたので本項では省略する。

(2) Mg^{2+} の影響

硝酸マグネシウムを純水に溶かして、10,000 ppm (Mg^{2+} として) マグネシウム溶液を作成した。このマグネシウム溶液を用い、各交換吸着体のマグネシウム化を行い、マグネシウム飽和交換吸着体を作成した。

硝酸マグネシウムを純水に溶かして約 1,000, 500, 150, 50, 15, 5 ppm (Mg^{2+} として) の溶液を作成し、これらの溶液の中へ、各放射性陽イオンを $10^{-2} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ 程度、別々に加えて種々の原水を作成した。

各々のビーカーにマグネシウム飽和交換吸着体を 3 g ずつ別々に入れ、ここへ種々の原水を約 150 ml ずつ添加した。時々攪拌しながら 24 時間放置し、その後、ビーカー内の

上澄液をろ紙（東洋ろ紙 No. 4）でろ過して、ろ液の放射能濃度および Mg^{2+} 濃度を測定した。 Mg^{2+} 濃度は分配実験の前後で変化しないことをたしかめた。またろ液の pH は 5.5 ～ 6.5 で、24 時間経過中の室温は 20℃～25℃を保つように調節した。

分配実験の前後の各放射性陽イオンの溶液中での放射能濃度変化および添加原水の量からマグネシウム飽和交換吸着体に分配された各放射性陽イオンの分配量を求めて、(I-2-1) 式より分配係数値の計算を行った。

(3) Na^+ の影響

硝酸ナトリウムを純水に溶かして、20,000 ppm (Na^+ として) ナトリウム溶液を作成した。この溶液を用いて各交換吸着体のナトリウム化を行い、ナトリウム飽和交換吸着体を作成した。

一方、硝酸ナトリウムを純水に溶かして、5,000, 1,000, 200, 50 ppm (Na^+ として) 程度のナトリウム溶液を作成し、これらの溶液の中へ、各放射性陽イオンを別々に $10^{-2} \mu Ci/ml$ 程度加えて、原水を作成した。

Mg^{2+} の時と同様にナトリウム飽和交換吸着体に種々の原水を加えて分配実験を行った。

なお、添加原水の Na^+ 濃度は分配実験の前後で変化しないことがたしかめられ、またろ液の pH は 5.5 ～ 6.5 で、分配実験中の室温は 20℃～25℃を保つように調節した。

3-3-2 実験結果および考察

本項 3-2-1 の実験の結果、 Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ の各濃度に対応する各放射性陽イオンの分配係数値 Kd_A が求められた。このうち図 I-2-7, 図 I-2-8 に ^{85}Sr の分配係数値 Kd_{Sr} の変化を、図 I-2-9, 図 I-2-10, に ^{60}Co の分配係数値 Kd_{Co} の変化を、グリーンサンド、KUR 砂に関して示した。

各図とも同時に Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ の影響が比較できるようにするため、横軸にこれら 3 種の陽イオンの液中濃度を meq/ml 単位で、たて軸にこれら 3 種の陽イオンの各々の濃度に対応する ^{85}Sr および ^{60}Co の分配係数 $Kd_{Sr \text{ for } Ca^{2+}}$, $Kd_{Sr \text{ for } Mg^{2+}}$, $Kd_{Sr \text{ for } Na^+}$, $Kd_{Co \text{ for } Ca^{2+}}$, $Kd_{Co \text{ for } Mg^{2+}}$, $Kd_{Co \text{ for } Na^+}$ を ml/g 単位で、それぞれ対数目盛で表示した。なお Ca^{2+} 濃度 1 ppm は $5.0 \times 10^{-5} meq/ml$ 、 Mg^{2+} 濃度 1 ppm は $8.2 \times 10^{-5} meq/ml$ 、 Na^+ 濃度 1 ppm は $4.3 \times 10^{-5} meq/ml$ に相当する。

図 I-2-7, 図 I-2-8 および図 I-2-9, 図 I-2-10 において、

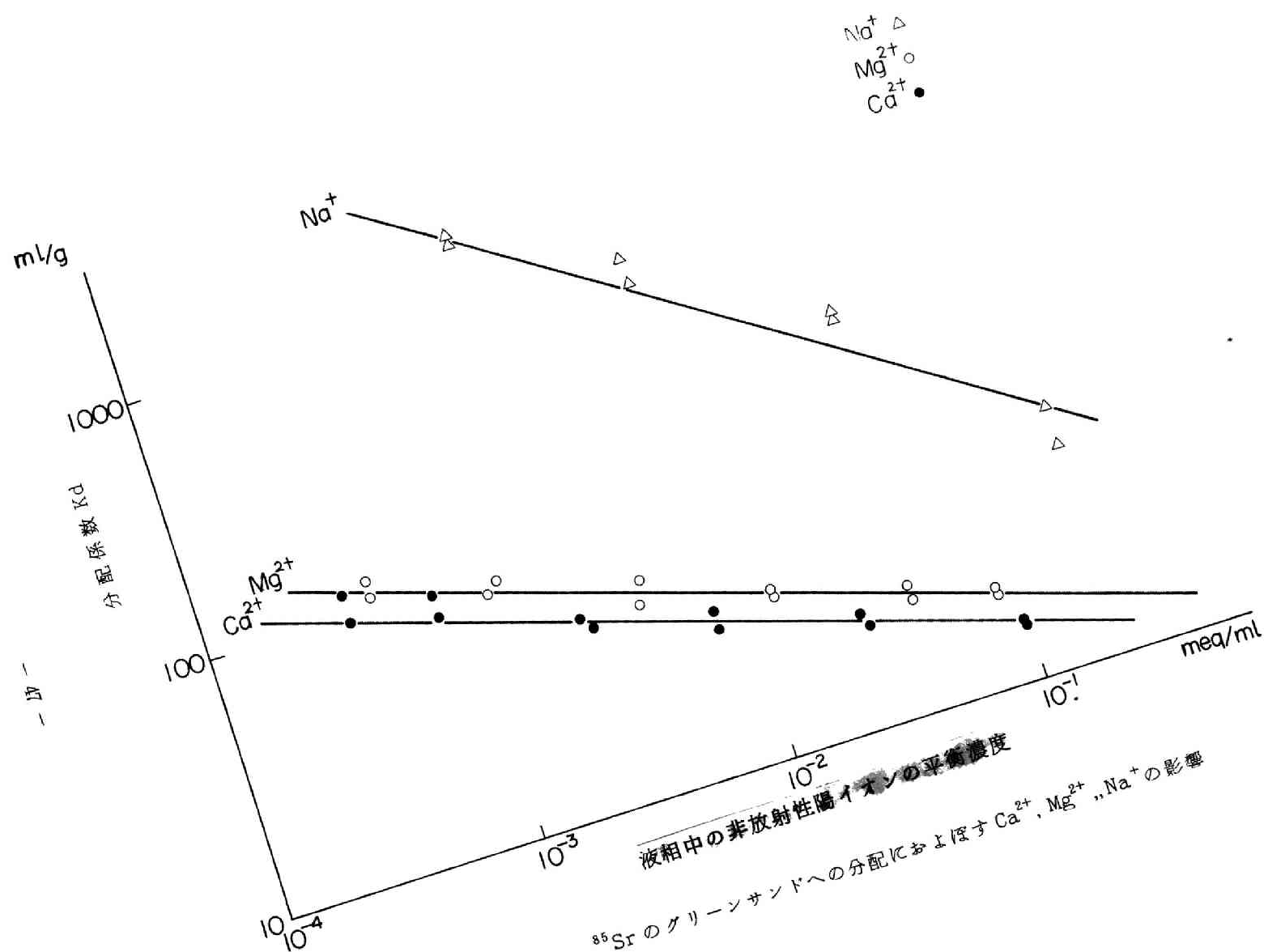


図 1-2-7 ^{85}Sr のグリーンサンドへの分配におよぼす Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ の影響

液相中の非放射性陽イオンの平衡濃度

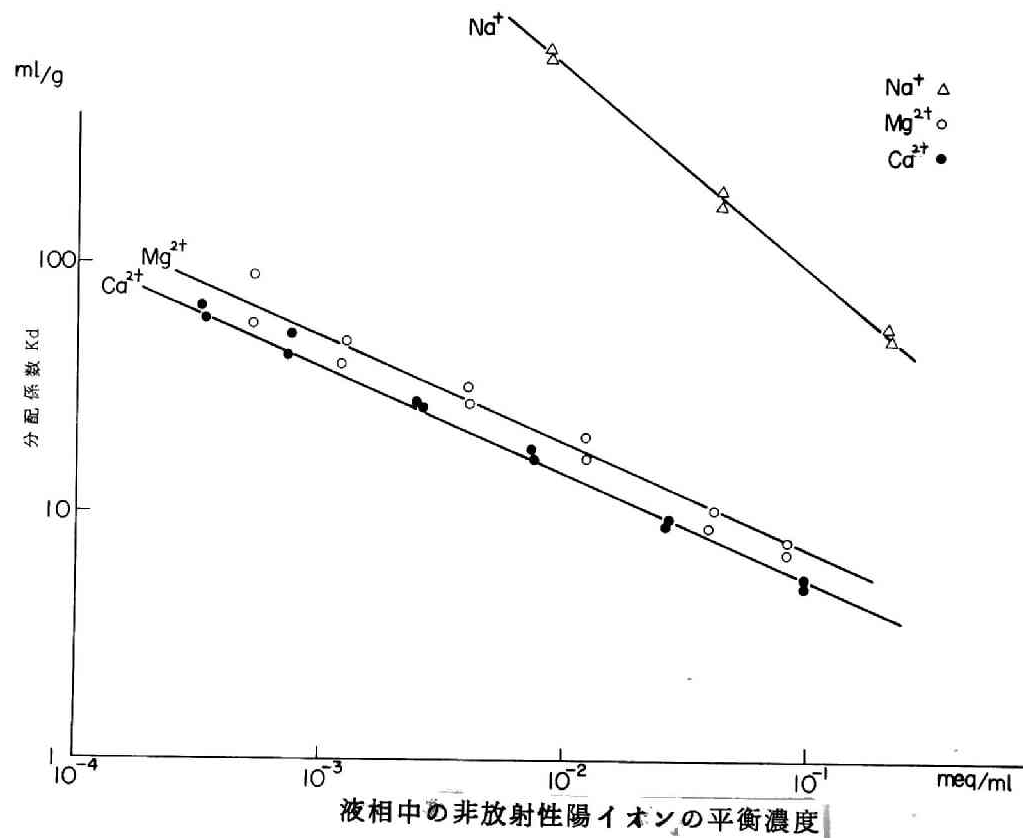


図 I - 2 - 8 ^{85}Sr の KUR 砂への分配におよぼす Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^{+} の影響

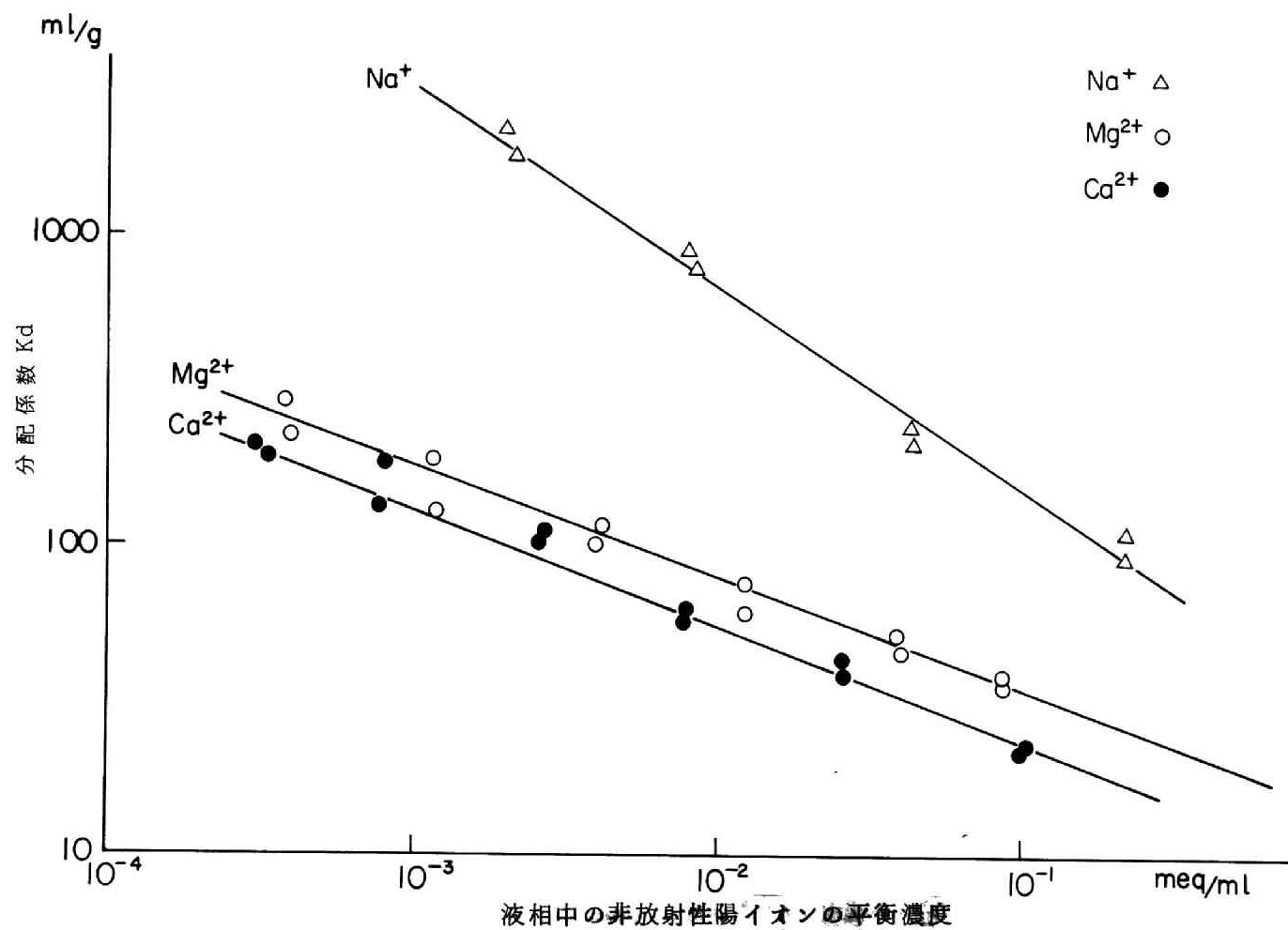


図 I - 2 - 9 ^{60}Co のグリーンサンドへの分配におよぼす Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ の影響

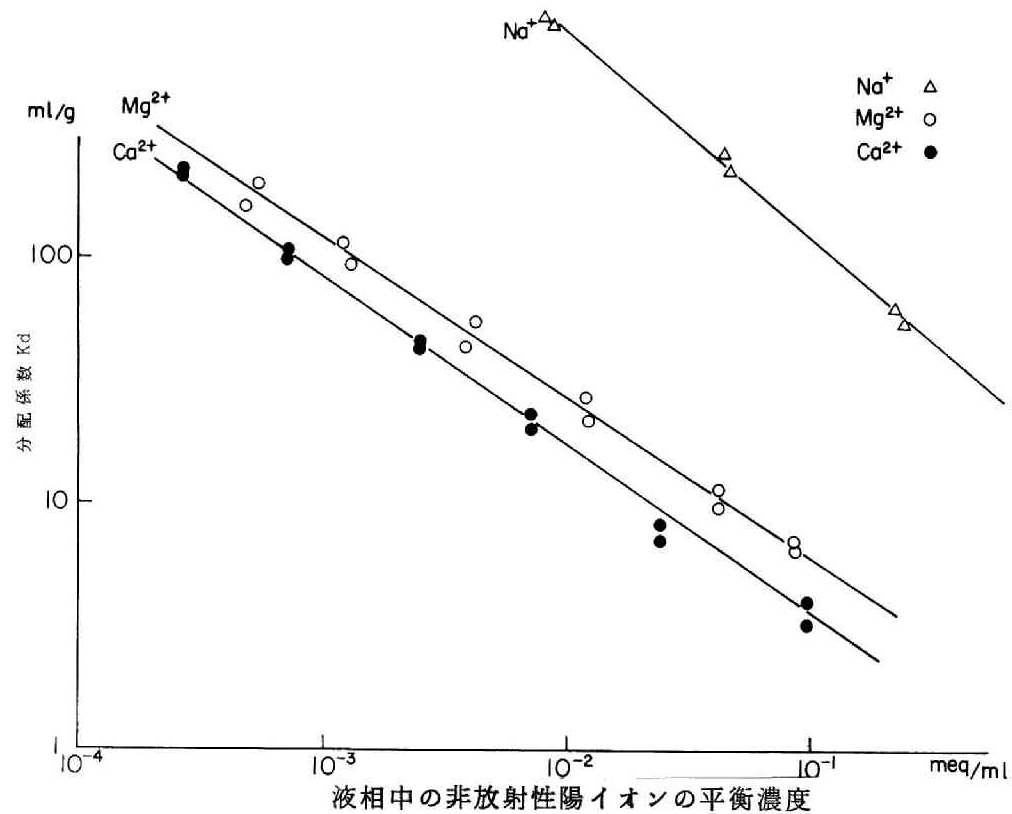


図 1-2-10 ^{60}Co の KDP 吸着の分配係数と液相中の Ca^{2+} Mg^{2+} Na^+ の影響

Ca^{2+} 濃度と ^{85}Sr および ^{60}Co の分配係数値 $Kd_{\text{Sr for Ca}^{2+}}$ および $Kd_{\text{Co for Ca}^{2+}}$ の間には、両対数紙上で直線関係が読みとれ、実験式として

$$Kd_{\text{Sr for Ca}^{2+}} = m \cdot (C_{\text{Ca}})^{-n} \quad (\text{I-2-4})$$

$$Kd_{\text{Co for Ca}^{2+}} = m \cdot (C_{\text{Ca}})^{-n} \quad (\text{I-2-5})$$

が得られることは、本章第2節ですでに報告したとおりである。

このような直線関係は同様に Mg^{2+} 濃度に対応する ^{85}Sr および ^{60}Co の分配係数値 $Kd_{\text{Sr for Mg}^{2+}}$ および $Kd_{\text{Co for Mg}^{2+}}$, Na^{+} 濃度に対応する $Kd_{\text{Sr for Na}^{+}}$ および $Kd_{\text{Co for Na}^{+}}$ との間にも読みとれ (I-2-4) 、 (I-2-5) 式と同じ型式で表現できることがわかった。

また、図には示さなかったが、他の放射性陽イオン (^{22}Na , ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{65}Zn , ^{133}Ba) についてもほぼ同様の直線関係が認められ、(I-2-4) 、 (I-2-5) 式と同じ型式で表現できることを知った。

したがって放射性陽イオン A が安定なイオン X によって飽和された交換吸着体に分配する時、放射性陽イオン A の分配係数 $Kd_{\text{A for X}}$ とイオン X の液中濃度 C_x との間には、次の実験式が得られた。

$$Kd_{\text{A for X}} = m_x \cdot (C_x)^{-n_x} \quad (\text{I-2-3})$$

(I-2-3) 式中の m_x , n_x の値を、 Ca^{2+} , Mg^{2+} および Na^{+} ごとに表 I-2-10, 表 I-2-11, 表 I-2-12 に示した。ただし (I-2-3) 式は実験式であるので、 m_x , n_x 値を求めるにあたっては、 $Kd_{\text{A for X}}$, C_x の数値を表示する単位を定めおく必要があり、 $Kd_{\text{A for X}}$ については ml/g , C_x については 10^{-3}meq/ml (Ca^{2+} 濃度で 20ppm に相当し、一般的な地下水中 Ca^{2+} 濃度はこの程度の値である¹⁾) を使用した。

表 I-2-10 の Ca^{2+} の支配下における m_{Ca} , n_{Ca} 値の傾向に関しては本章第2節で詳しく述べたのでここでは省略する。

表 I-2-11 の Mg^{2+} の支配下における m_{Mg} , n_{Mg} 値を表 I-2-10 の Ca^{2+} の影響下における m_{Ca} , n_{Ca} 値と比較してみると、 n_x 値は各交換吸着体ごとに、各放射

表I-2-10 放射性陽イオンの m_{Ca} と n_{Ca}

放射 性 陽イオン	グリーンサンド		KUR砂	
	m_{Ca}	n_{Ca}	m_{Ca}	n_{Ca}
^{22}Na	18	0.25	24	0.17
^{137}Cs	270	0.15	1400	0.26
^{54}Mn	78	0.32	40	0.53
^{60}Co	130	0.38	84	0.67
^{65}Zn	190	0.40	130	0.57
^{85}Sr	68	0.31	38	0.43
^{133}Ba	150	0.29	200	0.48

m_{Ca} , n_{Ca} の算出にあたっては分配係数値、液相中 Ca^{2+} 濃度をそれぞれ ml/g , $10^{-3} meq/g$ で表示した。

表I-2-11 放射性陽イオンの m_{Mg} と n_{Mg}

放射 性 陽イオン	グリーンサンド		KUR砂	
	m_{Mg}	n_{Mg}	m_{Mg}	n_{Mg}
^{22}Na	24	0.23	35	0.21
^{137}Cs	340	0.18	1900	0.25
^{54}Mn	110	0.35	56	0.52
^{60}Co	180	0.36	120	0.65
^{65}Zn	270	0.38	190	0.60
^{85}Sr	90	0.30	51	0.44
^{133}Ba	210	0.30	270	0.46

m_{Mg} , n_{Mg} の算出にあたっては分配係数値、液相中の Mg^{2+} 濃度をそれぞれ ml/g , $10^{-3} meq/g$ で表示した。

性陽イオンごとにほとんど同じ値を示し、 m_x 値は前者の方がやや大きい傾向がみられた。これは Mg^{2+} の支配下における m_{Mg} , n_{Mg} 値に対する各放射性陽イオンごと、各交換吸着体ごとの影響力は、 Ca^{2+} の支配下における場合と、ほとんど同じ傾向であることを示し、前者の m_x 値がやや大きいのは、当量単位で比較した場合、 Mg^{2+} の支配下における方が Ca^{2+} の支配下における時よりも放射性陽イオンが、やや良く分配することを示している。これは Mg^{2+} と Ca^{2+} がともに II・a 族に属し、両者の化学的挙動が非常に良く似ており、また Ca^{2+} の方がやや水和

表I-2-12 放射性陽イオンの m_{Na} と n_{Na}

放射 性 陽イオン	グリーンサンド		KUR砂	
	m_{Na}	n_{Na}	m_{Na}	n_{Na}
^{137}Cs	600	0.12	1000	0.40
^{54}Mn	3400	0.64	4500	0.80
^{60}Co	3100	0.66	4600	0.84
^{65}Zn	2900	0.63	4800	0.83
^{85}Sr	2800	0.65	4000	0.81
^{133}Ba	2900	0.61	3600	0.80

m_{Na} , n_{Na} の算出にあたっては分配係数値、液相中 Na^+ 濃度をそれぞれ ml/g , $10^{-3} meq/g$ で示した。

水和イオン半径が小さい (Mg^{2+} , Ca^{2+} の水和イオン半径はそれぞれ 4.28 \AA , 3.64 \AA ¹²⁾ である) ため交換吸着体に対する分配力がやや大きいのが原因と考えられる。一方、地下水中に含まれる陽イオンの影響という観点からみれば、地下水中に含まれる Mg^{2+} 濃度は地下水ごとに種々の値を示すが、一例として表 I-2-9 に示した地下水をと

り上げてみると、 Ca^{2+} 濃度が10.6 ppm (Ca^{2+} として)に対して8.2 ppm (Mg^{2+} として)を示す。これを当量単位で示せば、 Ca^{2+} 濃度が $5.3 \times 10^{-4} \text{ meq/ml}$ 、 Mg^{2+} 濃度が $6.7 \times 10^{-4} \text{ meq/ml}$ となる。この値に対応する放射性陽イオンの分配係数値は例えば ^{85}Sr の場合図 I-2-8 の KUR 砂に関してみれば、 $K_{d\text{Sr for Ca}^{2+}} \div 50$ 、 $K_{d\text{Sr for Mg}^{2+}} \div 60$ となり、放射性陽イオンの分配現象に影響を与える地下水中の陽イオンとして Mg^{2+} は Ca^{2+} と同様に重要なイオンであることがわかった。

表 I-2-12 の Na^+ の支配下における m_{Na} , n_{Na} 値を表 I-2-10, 表 I-2-11 の Ca^{2+} および Mg^{2+} の支配下における m_x , n_x 値と比較してみると、特に2価の放射性陽イオン ^{54}Mn , ^{60}Co , ^{65}Zn , ^{85}Sr , ^{133}Ba の m_x 値が非常に大きい、すなわち、 Na^+ の支配下においてはこれら2価の放射性陽イオンは非常に良く分配されることがわかった。この現象は地下水中に主として含まれる陽イオンの影響という観点からみれば、一例として表 I-2-9 の地下水についてみると、 Ca^{2+} 濃度が10.6 ppm (Ca^{2+} として)に対して Na^+ 濃度は31.6 ppm (Na^+ として)で当量単位に換算すると、それぞれ $5.3 \times 10^{-4} \text{ meq/ml}$ 、 $1.4 \times 10^{-3} \text{ meq/ml}$ となる。この値に対応する放射性陽イオンの分配係数値は例えば ^{85}Sr の場合、一番その割り合いが小さい図 I-2-7 のグリーンサンドに関するものでさえも、 $K_{d\text{Sr for Na}^+}$ の値が $K_{d\text{Sr for Ca}^{2+}}$ の値の25倍以上であり、KUR砂に対してはさらに大きな差があることがわかった。したがって一般的な水質の地下水中の種々の陽イオンが2価の ^{85}Sr (もちろん ^{90}Sr , ^{89}Sr なども同じ)や ^{60}Co などの微量の放射性陽イオンの分配現象に与える影響を比較する場合には Na^+ のそれは Ca^{2+} や Mg^{2+} のそれに比べて非常に小さく工学的見地からは無視してもさしつかえないと推測できる。

つぎに1価の陽イオンで環境安全上重要であると考えられる ^{137}Cs について検討してみる。この場合には2価の放射性陽イオンの場合とは違って Na^+ の支配下においても m_{Na} 値はほとんど大きくならず、KUR砂に関しての分配においては ^{137}Cs の m_{Na} 値は、 Ca^{2+} や Mg^{2+} の支配下の場合よりも小さくなっていることがわかった。さらに、 Na^+ の支配下において他の2価の放射性陽イオンの m_x 値と比較した場合も、グリーンサンドおよびKUR砂への分配に関する m_{Na} 値は小さく(約 $\frac{1}{5}$ 程度)になっており、表 I-2-10, 表 I-2-11 で示された ^{137}Cs の特異吸着はみられなかった。

以上の現象と本章第2節で得られた結果とを総合すると、交換容量で示される交換吸着の座の数は交換吸着体ごとに一定であるが、個々の交換吸着の座に関しては、グリーンサンドやKUR砂の粘土鉱物の場合には、2価のイオンを強く吸着する座、1

価のイオンを強く吸着する座などが混在しており、前者には2価の Ca^{2+} や Mg^{2+} が強く影響し、後者には1価の Na^+ が強く影響すると考えた方がこれら粘土鉱物に関する分配現象を説明しやすい。

ただ、 ^{137}Cs に与える地下水中の陽イオンの影響という点から見ると、明らかに Na^+ の方が Ca^{2+} や Mg^{2+} よりも大きく影響するが、 ^{137}Cs の m_x 値自体が表I-2-10のKUR砂に対する ^{85}Sr の m_x 値などと比較すると非常に大きいため、放射性陽イオンの地中移動という点からみれば ^{85}Sr や ^{60}Co にくらべて移動しにくい陽イオンである。

3-4 結 論

放射性陽イオンの分配係数には地下水中の種々の非放射性陽イオンが影響を与える。本章では、第2節において、このうち Ca^{2+} のみに注目して、主成分が Ca^{2+} で微量成分が放射性陽イオンであるという2成分系について実験的研究を行った。そこで本節では、この2成分のうちの主成分を Mg^{2+} や Na^+ にして実験的研究を行い、 Ca^{2+} と Mg^{2+} と Na^+ との比較を行った。

実験としては、まず NH_4^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Na^+ 、 Cs^+ などの陽イオンを用いて各交換吸着体の交換容量の測定を行った。この結果、どの陽イオンを用いても、どのような測定方法を用いても、交換吸着体ごとに交換容量はほぼ一定であることを知った。

つぎに、マグネシウム飽和交換吸着体やナトリウム飽和交換吸着体に対する、 ^{22}Na 、 ^{137}Cs 、 ^{54}Mn 、 ^{60}Co 、 ^{65}Zn 、 ^{85}Sr 、 ^{133}Ba などの放射性陽イオンの分配実験を液相中の Mg^{2+} と Na^+ の濃度を変化させながら行った。

この結果、微量な放射性陽イオンAの分配係数値 $Kd_{A \text{ for } X}$ と主成分イオンXの液相中濃度 C_X との間には次の実験式が得られることがわかった。

$$Kd_{A \text{ for } X} = m_x \cdot (C_X)^{-n_x} \quad (\text{I-2-3})$$

(I-2-3)式で示された m_x 、 n_x 値について Ca^{2+} および Mg^{2+} および Na^+ のそれぞれの影響力を比較した。

この結果、一般的には、 Ca^{2+} と Mg^{2+} とが放射性陽イオンの分配に大きな影響力を持ち、 Na^+ はあまり影響がないが、 ^{137}Cs の粘土鉱物への分配に関してのみ、 Na^+ が大きな影響力を持つことを知った。しかし ^{137}Cs の分配係数値は、 Cs^{2+} および Ma^{2+} に支配される時の2価の放射性陽イオンの粘土鉱物への分配係数値にくらべれば非常に大き

い。

したがって、放射性陽イオンの地下帯水層の移動を解析する場合には放射性陽イオンとしては2価のもの、なかでも ^{85}Sr （実際には ^{90}Sr が環境安全上問題である）と ^{60}Co が環境安全上重要で、これらのイオンの挙動を支配する地下水中の非放射性陽イオンとしては Ca^{2+} と Mg^{2+} とを取り上げれば充分であることがわかった。

第 I 編 第 2 章の参考文献

- (1) 筒井天尊、桂山幸典、西牧研壮；“放射性廃棄物の処分に関する研究” KURRI-TR-121 (1973)。
- (2) 井上頼輝；“放射性廃棄物の地中処分に関する研究”，京都大学学位論文，33 (1970)。
- (3) 筒井天尊、西牧研壮；保健物理，10，79 (1975)。
- (4) 原子力安全協会編；“固体廃棄物処理処分委員会中間報告書”，原安協報告-15 (1969)。
- (5) 清水 博；“イオン交換樹脂”，共立出版，102 (1961)。
- (6) 日本水道協会編；“上水試験方法”，136 (1960)。
- (7) 筒井天尊，西牧研壮；保健物理，10，203 (1975)。
- (8) Inoue, Y. and W.J. Kaufman; Health Phys., 9, 705 (1963)。
- (9) 筒井天尊，木村捷二郎；“バーミキュライトカラムによる放射性セシウムの除去に関する研究”，KURRI-TR-83 (1971)。
- (10) 井上頼輝；“放射性廃棄物の地中処分に関する研究”，京都大学学位論文，45 (1970)。
- (11) Dau, G.J.; Nuclear Waste Management and Transportation, Quarterly Progress Report, October through December 1974”, BNWL-1899, 8 (1975)。
- (12) 木曾義之；“ゾーン電気泳動”南江堂，38 (1971)。
- (13) 井上頼輝；“放射性廃棄物の地中処分に関する研究”，京都大学学位論文，附3 (1970)。
- (14) 池田重良；“炎光・原子吸光分析，基礎分析化学講座18”，共立出版，37 (1967)....

第3章 微量放射性陽イオンの交換吸着体への分配におよぼす共存

Ca^{2+} と Mg^{2+} との影響

第1節 はしがき

放射性陽イオンの分配係数は地下水中に主として含まれる非放射性陽イオンによって大きな影響をうける。そこで前章において、地下水中の非放射性成分が Ca^{2+} のみの場合、 Mg^{2+} のみの場合、 Na^+ のみの場合と単純化して現象を取り扱い、実験的研究を行った¹⁾²⁾。この結果、実験式として

$$Kd_{A \text{ for } X} = m_X \cdot (C_X)^{-n_X} \quad (I-3-1)$$

ただし、 $Kd_{A \text{ for } X}$: 非放射性陽イオンXに支配される放射性陽イオンAの分配係数

C_X : 非放射性陽イオンXの液相中濃度

m_X, n_X : 交換吸着体の種類、放射性陽イオンA、非放射性陽イオンXなどで定まる係数

を得た。

実験によって求められた(I-3-1)式中の m_X, n_X 値に検討を加えた結果、放射性陽イオンの分配現象(分配係数値の変化)に大きな影響を与える地下水中の非放射性陽イオンは Ca^{2+} と Mg^{2+} であると予測した。

そこで本章では、非放射性成分として Ca^{2+} と Mg^{2+} とが共存した地下水に微量に放射性陽イオンが混入した状態で、放射性陽イオンが土砂(交換吸着体)へどのように分配するかについて研究を行った⁷⁾。

まず、 Ca^{2+} と Mg^{2+} とが別々に単独で影響を与える場合の実験結果をもとにして、両イオンが共存して影響を与える場合について、簡単な分配モデルを考え、このモデルを用いて理論的考察を行った。

つぎに理論的考察にもとづいて、 Ca^{2+} および Mg^{2+} が種々の濃度で共存する状態での放射性陽イオンの交換吸着体に対する分配現象(分配係数)を求める実験を行った。

なお、放射性陽イオンとして、前章の実験結果および原子力発電所から発生する放射性廃棄物中核種³⁾などを考慮して環境安全上重要な ^{60}Co と ^{90}Sr とを取り上げ、知見を求めることにしたが、 ^{90}Sr については、短半減期の ^{85}Sr を用いた。

また交換吸着体は前章と同じくグリーンサンドとKUR砂(京都大学原子炉実験所

構内地下水層より採取したもの)とを用いた。

第2節 理論的考察

本編第1章で述べたように、イオン交換吸着に関しては、質量作用の法則をはじめとして種々の理論が提案されたが⁵⁾、これらの理論はスチレンベースイオン交換樹脂はともかく、本章の目的とする粘土鉱物交換吸着体には必ずしも応用できないし、また地下水に非放射性成分が二種以上、大量に存在するところへ微量の放射性陽イオンが混入し、平衡に達している状態に関しては十分に説明されていない¹⁾。

そこで本節では、前章の実験結果をもとにして、非放射性成分として Ca^{2+} と Mg^{2+} とが大量に存在しているところへ、微量の ^{60}Co または ^{85}Sr が混入して平衡に達している状態をモデル化して理論的考察を行った。

2-1 分配モデル

陽イオンX(たとえば Ca^{2+} のこと)とY(たとえば Mg^{2+} のこと)とが平衡状態で交換吸着体の交換の座を占有しているところへ、放射性陽イオンA(^{60}Co , ^{85}Sr などである)が割り込みイオンXおよびYが占める座の一部を占有し、平衡状態に達した分配モデルを考える。

この分配モデルにおいてはつぎの(I - 3 - 2)式から(I - 3 - 7)式までの拘束条件があるとする。

$$q_{xt} \div q_{\max \text{ for } X} \quad (\text{I} - 3 - 2)$$

ただし、 q_{xt} : 液相中に陽イオンとしてXのみが存在し、単位体積の液相中に占めるイオンXの数が C_{xt} の時に、単位重量の交換吸着体でイオンXが占める座の数。

$q_{\max \text{ for } X}$: 液相中に陽イオンとしてイオンXのみが存在する時、イオンXが単位重量の交換吸着体内で占めることが可能な座の数の最大値。

すなわち、液相中に存在する陽イオンがXのみである時には、イオンXの単位液相中のイオン数にかかわらず単位重量の交換吸着体内で占める座の数はほぼ一定である。また液相中に微量の放射性陽イオンが混入した場合も(I - 3 - 2)式の関係は成立

する。

$$q_{\max \text{ for } X} \div q_{\max \text{ for } Y} \div \cdots \div q_{\max} \quad (\text{I-3-3})$$

ただし、 $q_{\max \text{ for } Y} : q_{\max \text{ for } X}$ と同じ意味でイオン Y についての値。

q_{\max} : 交換吸着体固有の値で、単位重量当りに有する交換可能な座の数。

すなわち、液相中に陽イオンとしてイオン X, イオン Y などのみが単独で存在する時にはイオン X, イオン Y などが交換吸着体の交換の座をすべて占め、その時占める座の数はイオンの種類すなわち X, Y などにかかわらずほぼ一定である。

$$Kd_{A \text{ for } X} = q_A / C_A = m_X \cdot (C_X)^{-n_X} \quad (\text{I-3-4})$$

ただし、 $Kd_{A \text{ for } X}$: 液相中にイオン X のみが存在して交換吸着体を飽和している系に混入した微量の放射性陽イオン A の分配係数で q_A / C_A で示される。

q_A : 平衡時に微量放射性イオン A が単位重量の交換吸着体中で占める座の数。

C_A : 平衡時に放射性イオン A が単位体積の液相中に存在する数。

C_X : イオン X が単位体積の液相中に存在する数。

m_X, n_X : イオン X, イオン A および交換吸着体によって定まる係数。

(I-3-4) 式は 2 つの意味を持っている。まずイオン X の液相中濃度 (単位体積液相中に存在するイオン X の数) が一定の系へ、微量放射性陽イオン A が混入した場合は、イオン A の分配係数値は一定値を示す。すなわちイオン A が交換吸着体の交換の座へ割り込む数はイオン A が単位体積液相中に存在する数に比例する。もう一つの意味は、イオン A の分配係数は、イオン X の液相中濃度の関数で示される。すなわちイオン A がイオン X で飽和された交換の座へ割り込む割合はイオン X が単位体積液相中に存在する数によって支配される。

以上の拘束条件は前章の実験結果をもとにしたものであるが、さらにつぎの拘束条件を考える。

$$q_{\max} \div q_X + q_Y \quad (\text{I-3-5})$$

ただし、 q_X, q_Y : イオン X および Y の液相中濃度がそれぞれ C_X, C_Y の時のイオン X お

よび Y が単位重量の交換吸着体の中でそれぞれ占める座の数。

$$\frac{q_x}{C_x} = K_{X-Y} \cdot \frac{q_y}{C_y} \quad (\text{I-3-6})$$

ただし、 K_{X-Y} ：イオン X と Y との間の平衡定数で、一般に、イオン X および Y が同レベルの液相中濃度で共存し、交換平衡に達しており、かつ両者の関係が Ca^{2+} と Mg^{2+} との関係のように、等価で同族の場合には一定⁴⁾。

すなわち、イオン X と Y とが、単位重量の交換吸着体内で占める座の数は両イオンが単位体積液相中で存在する数で定まり、かつ交換吸着体で占めるそれぞれの座の和は、交換吸着体の有する交換の座の数に等しい。

$$q_{at} = q_{ax} + q_{ay} \quad (\text{I-3-7})$$

ただし、 q_{at} ：イオン X および Y の液相中濃度が C_x, C_y で、放射性陽イオン A の液相中濃度が C_{at} の時に、イオン A が単位重量の交換吸着体の中で割り込めた座の数。

q_{ax}, q_{ay} ：イオン X, Y および A の液相中濃度がそれぞれ C_x, C_y および C_{at} の時に、単位重量の交換吸着体の交換の座のうちでイオン X および Y がそれぞれ占める座に割り込むイオン A の数。

すなわち、放射性陽イオン A はイオン X および Y があらかじめ占有した座に、割り込んでゆき、その総数はイオン X の占有した座に割り込んだものと、イオン Y が占有した座に割り込んだものの和である。

2-2 理論的考察

以上の拘束条件を持った分配モデルを考えて、いまイオン X, Y および放射性陽イオン A の液相中濃度を C_x ,

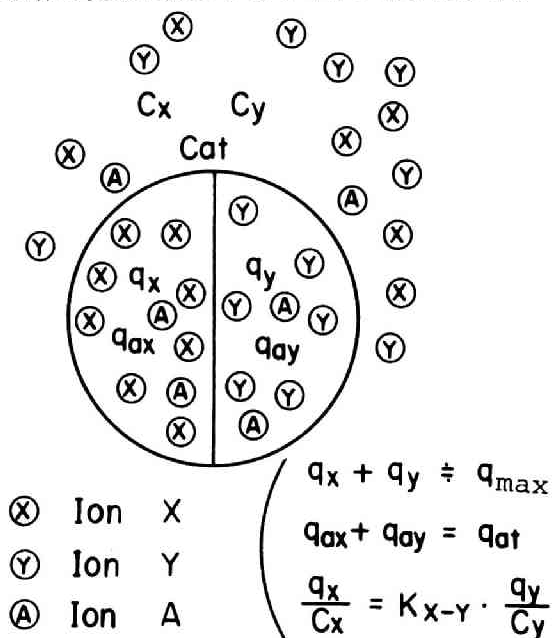


図 I-3-1 分配モデル

C_y, C_{at} として検討を進める。

この分配モデルを図に示すと図 I-3-1 のようになる。図中の円内は単位重量の交換吸着体を、円外は単位体積の液相を示しており、さらに交換の座は系全体に均一に分布しているが、ここで述べる理論の展開をわかりやすくするために交換体の単位量を示す円の内の交換の座を、イオン X および Y で占められた交換の座ごとに集め、整理してそれぞれ円内の左部、右部に示した。なお、この場合イオン A についても、イオン X および Y のそれぞれによって占められた座に割り込むものごとと同じように整理して示した。

まず、図 I-3-1 の円の左部のイオン X の集合について考えてみる。いま右部はイオン Y の集合であるが、右部もイオン X で占められた状態でかつ左部のイオン X およびイオン A の状態が図 I-3-1 に示したままであるとする。当然この時液相中で存在する非放射性陽イオンは X のみになり、このような状態を保つために必要なイオン X の単位体積中のイオン数は C_{xT} であるとする、 C_{xT} と C_x との関係は図より明らかに

$$\frac{q_x}{C_x} \doteq \frac{q_{max}}{C_{xT}} \quad (I-3-8)$$

となる。

一方、放射性陽イオン A は液相中の非放射性陽イオンが X のみの場合には (I-3-4) 式から簡単に交換吸着体全体に割り込む数が求められ、その数を q_{axT} とすると、

$$q_{axT} = m_X \cdot (C_{xT})^{-n_X} C_{at} \quad (I-3-9)$$

となる。また q_{axT} と q_{ax} との間には当然

$$\frac{q_x}{q_{ax}} \doteq \frac{q_{max}}{q_{axT}} \quad (I-3-10)$$

が成立するので、結局図 I-3-1 の円の左部に示されたイオン X で占められた座に割り込む放射性陽イオン A の数 q_{ax} は新たに仮定した C_{xT}, q_{axT} を用いると、(I-3-9), (I-3-10) 式より

$$q_{ax} \doteq m_X \cdot (C_{xT})^{-n_X} \cdot \frac{q_x}{q_{\max}} \cdot C_{at} \quad (\text{I-3-11})$$

となる。

イオンYについても同様に図 I-3-1 の円の左部もイオンYの集合であると置き換えて考え、この時の単位体積液相中のイオンYの数を C_{yT} とし、対応する放射性陽イオンAの単位重量の交換吸着体への全分配数を q_{ayT} とすると、(I-3-8), (I-3-9), (I-3-10) 式と同じ型の関係式が得られる。この結果、図 I-3-1 の円の右部に示されたイオンYで占められた座に割り込む放射性陽イオンAの数 q_{ay} は (I-3-11) 式と同様に

$$q_{ay} \doteq m_Y \cdot (C_{yT})^{-n_Y} \cdot \frac{q_y}{q_{\max}} \cdot C_{at} \quad (\text{I-3-12})$$

と表わされる。

したがって放射性陽イオンAの全分配数 q_{at} は q_{ax} と q_{ay} との和として求められる。

q_{ax} , q_{ay} はそれぞれ C_{xT} , C_{yT} という未知の値を含んでいるが、(I-3-6) 式および (I-3-8) 式と、(I-3-8) 式と同型のイオンYに関する次式

$$\frac{q_y}{C_y} \doteq \frac{q_{\max}}{C_{yT}} \quad (\text{I-3-13})$$

とから

$$C_{yT} \doteq K_{X-Y} \cdot C_{xT} \quad (\text{I-3-14})$$

$$\frac{q_{\max}}{C_{xT}} \doteq \frac{q_x}{C_x} \doteq \frac{q_y}{(K_{X-Y})^{-1} \cdot C_y} \doteq \frac{q_x + q_y}{C_x + (K_{X-Y})^{-1} \cdot C_y} \quad (\text{I-3-15})$$

とが得られ、さらに (I-3-15) 式に (I-3-5) 式を代入すると、

$$C_{xT} \doteq C_x + (K_{X-Y})^{-1} \cdot C_y \quad (\text{I-3-16})$$

が得られる。

(I-3-11), (I-3-12), (I-3-14) 式よりイオン A の全分配数 q_{at} は、

$$q_{at} \div \{ m_X \cdot (C_{XT})^{-n_X} \cdot q_X + m_Y \cdot (C_{XT})^{-n_Y} (K_{X-Y})^{-n_Y} \cdot q_Y \} \cdot \frac{C_{at}}{q_{max}} \quad (I-3-17)$$

が得られ、 C_{XT} は (I-3-16) 式で示される。

(I-3-17) 式において C_X , C_Y , q_{max} , K_{X-Y} などが定まれば、 q_X , q_Y は (I-3-5), (I-3-6) 式より求まり、放射性陽イオン A に対する m_X , m_Y , n_X , n_Y 値が既知であれば、 q_{at} は計算できる。

ところで本章では Ca^{2+} と Mg^{2+} とが共存して放射性陽イオンの分配現象に影響を与える場合について研究するのが目的であるので、前述のイオン X を Ca^{2+} 、イオン Y を Mg^{2+} として (I-3-17) 式をさらに検討する。放射性陽イオンとしては ^{60}Co と ^{85}Sr を取り上げ、これらのイオンに対して前章の実験結果で得られた m_{Ca} , n_{Ca} , m_{Mg} , n_{Mg} を表 I-3-1, 表 I-3-2 に示した。両表に示された各 m 値、 n 値は (I-3-1) 式の分配係数 $Kd_{A \text{ for } X} (= q_A / C_A)$ を ml/g 単位で、 C_X を $10^{-3} meq/ml$ 単位で表示して得られた値である。表 I-3-1, 表 I-3-2 によれば ^{60}Co および

表 I-3-1 ^{60}Co の m_X , n_X 値

陽イオン X	グリーンサント		KUR砂	
	m_X	n_X	m_X	n_X
Ca^{2+}	130	0.38	84	0.67
Mg^{2+}	180	0.36	120	0.65

表 I-3-2 ^{85}Sr の m_X , n_X 値

陽イオン X	グリーンサント		KUR砂	
	m_X	n_X	m_X	n_X
Ca^{2+}	68	0.31	38	0.43
Mg^{2+}	90	0.30	51	0.44

($Kd_{A \text{ for } X} \cdots ml/g$, $C_X \cdots 10^{-3} meq/ml$) ($Kd_{A \text{ for } X} \cdots ml/g$, $C_X \cdots 10^{-3} meq/ml$)

^{85}Sr に関して共に Ca^{2+} と Mg^{2+} の n 値がほぼ等しい²⁾ことがわかる。すなわち (I-3-17) 式において近似的に $n_X \div n_Y$ と置ける。

すると (I-3-17) 式は

$$Kd_{A \text{ for } X, Y} = \frac{q_{at}}{C_{at}} \div m_X \cdot \frac{\{ q_X + (m_Y / m_X) \cdot (K_{X-Y})^{-n_X} \cdot q_Y \}}{q_{max}} \cdot (C_{XT})^{-n_X} \quad (I-3-18)$$

と変形でき、(I-3-17)式よりも簡単に表現できる。(I-3-18)式において m_Y/m_X は表 I-3-1, 表 I-3-2 より計算でき、しかも (I-3-1) 式の型式から明らかに、 $n_X=n_Y$ の場合には、放射性陽イオンの分配係数値および非放射性陽イオンの液相濃度値の表示単位をどのようなものにしても、 m_Y/m_X は一定値である。

第3節 実験および結果

本章においては (I-3-6) 式で示された Ca^{2+} と Mg^{2+} との間の平衡定数⁴⁾を求める実験と、 Ca^{2+} および Mg^{2+} の濃度が変化する場合の ^{60}Co および ^{85}Sr の交換吸着体への分配係数値の変化を求める実験を行った。

3-1 Ca^{2+} と Mg^{2+} との間の平衡定数⁴⁾の測定

実験に使用した交換吸着体は前章の実験の場合と同様にグリーンサンド、KUR砂の2種で、各々の交換容量は 0.15, 0.031 meq/g である。

各交換吸着体を別々に 5 g ずつカラムに充填し、このカラムにあらかじめ作成した Ca^{2+} - Mg^{2+} 共存液を約 100 ml/hr で通水した。

Ca^{2+} - Mg^{2+} 共存液は硝酸カルシウムと硝酸マグネシウムとを純水で溶かして、 Ca^{2+} 濃度と Mg^{2+} 濃度との比が約 1:1, 3:1, 1:3 でかつ合計が約 10^{-1}meq/ml , $2 \times 10^{-3}\text{meq/ml}$ の組み合わせになるように種々作成した。

Ca^{2+} 濃度および Mg^{2+} 濃度は EDTA 法で測定し⁶⁾、カラムの出入口で各濃度が等しくなるまで Ca^{2+} - Mg^{2+} 共存液の通水を続けた。なお実験中の室温は $20^\circ\text{C} \sim 25^\circ\text{C}$ であった。

この結果、交換吸着体は Ca^{2+} と Mg^{2+} とで十分に交換平衡に達したと考えられるので、この時の Ca^{2+} および Mg^{2+} の液相中濃度と交換吸着体への交換量を用いて、(I-3-6) 式の平衡定数 $K_{\text{Ca-Mg}}$ を計算した。なお、交換吸着体へ吸着した Ca^{2+} および Mg^{2+} の量は、2N 食塩水を用いて、強制的に両イオンを交換吸着体から脱離させて測定した。

表 I-3-3 に Ca^{2+} - Mg^{2+} 共存液中の両イオン濃度および、実験により求められた平衡定数 $K_{\text{Ca-Mg}}$ を示した。平衡定数は各交換吸着体ごとにほぼ一定値が得られたので各交換吸着体ごとに平均値を求め、グリーンサンド、KUR砂についてそれぞれ 2.0, 1.7 を得た。

3-2 微量放射性陽イオンの分配 係数の測定

実験にもちいた放射性陽イオン⁶⁰Coおよび⁸⁵Srは前章の実験にもちいたのと同じもので、その化学的特性は前章表I-2-1で詳しく述べた。また交換吸着体も本節3-1の実験に用いたものと同じものを使用した。

硝酸カルシウムと硝酸マグネシウムとを純水に溶かして、Ca²⁺濃度とMg²⁺濃度との和が約 5×10^{-3} meq/

mlから約 10^{-1} meq/mlまでの種々のCa²⁺-Mg²⁺共存液を作成し、さらにこれらの各々の共存液の一部を取り出し、⁶⁰Coまたは⁸⁵Srを約 10^{-2} μ Ci/mlの濃度になるように添加して、各々の濃度の共存液に対応する⁶⁰Coまたは⁸⁵Srを含む原水を作成した。(共存液に添加した⁶⁰Coおよび⁸⁵Srの容量は微小なので共存液と、共存液に対応する原水とに含まれるCa²⁺およびMg²⁺の濃度はほとんど同じである。)

まず、各交換吸着体を5gずつ別々にカラムにつめ、各Ca²⁺-Mg²⁺共存液を別々に通水し、交換吸着体をCa²⁺とMg²⁺とで飽和させた。この後、交換吸着体の空けき水、間けき水等に含まれるCa²⁺とMg²⁺とを純水で洗い出し、交換吸着体をカラムから取り出し、減圧乾燥により水分を除去し、Ca²⁺-Mg²⁺共存液ごとに対応するCa²⁺-Mg²⁺飽和交換吸着体を作成した。

各Ca²⁺-Mg²⁺飽和交換吸着体を3gずつビーカーに入れ、さらに各々の飽和交換吸着体に対応する原水を約150mlずつ添加し、時々攪拌しながら24時間放置した。原水のpHは5.5~6.5程度で、分配実験中の室温は20℃~25℃であった。

24時間経過後に上澄み液をろ過し、ろ液のCa²⁺濃度、Mg²⁺濃度、放射能濃度の測定を行った。

Ca²⁺濃度およびMg²⁺濃度はEDTA法⁶⁾で測定したが、分配実験の前後で濃度変化はほとんどなかった。

ろ液の放射能濃度はNaIシンチレーションカウンタで測定し、分配実験の前後の濃度変化から交換吸着体へ分配された⁶⁰Coまたは⁸⁵Srの分配量を計算し、これによっ

表I-3-3 Ca²⁺とMg²⁺との間の平衡定数⁴⁾
の測定

原 水 濃 度		Ca ²⁺ -Mg ²⁺ の平衡 定数	
Ca ²⁺ 濃度 meq/ml	Mg ²⁺ 濃度 meq/ml	グリーン サンド	KUR砂
4.90×10^{-2}	4.95×10^{-2}	2.05	1.61
1.04×10^{-3}	1.08×10^{-3}	2.14	1.70
7.35×10^{-2}	2.56×10^{-2}	2.10	1.65
1.48×10^{-3}	5.35×10^{-4}	1.95	1.82
2.45×10^{-2}	7.25×10^{-2}	2.03	1.73
5.62×10^{-4}	1.45×10^{-3}	1.98	1.66
平 均 値		2.0	1.7

て ^{60}Co および ^{85}Sr の分配係数値を求めた。なお実験は同一条件で2つずつ行い分配係数値は両者の平均値を用いた。

求められた分配係数値は ^{60}Co および ^{85}Sr ごとにまとめて、原水中の Ca^{2+} 濃度および Mg^{2+} 濃度と共に表I-3-4、表I-3-5に示した。また表I-3-4、表I-3-5には次節の結果の考察の際に便利のように、(I-3-16)式で示された C_{XT} も併せて示した。

表 I - 3 - 4 ^{60}Co の分配係数の測定

原 水 濃 度		グ リ ー ン サ ン ド		KUR 砂	
Ca^{2+} 濃度 meq / ml	Mg^{2+} 濃度 meq / ml	Kd_{Co} ml / g	C_{XT} meq / ml	Kd_{Co} ml / g	C_{XT} meq / ml
4.9×10^{-2}	5.0×10^{-2}	27	7.4×10^{-2}	4.5	7.8×10^{-2}
8.1×10^{-2}	2.0×10^{-2}	24	9.1×10^{-2}	4.2	9.3×10^{-2}
2.1×10^{-2}	7.9×10^{-2}	28	6.1×10^{-2}	6.0	6.7×10^{-2}
1.1×10^{-2}	1.0×10^{-2}	40	1.6×10^{-2}	14	1.7×10^{-2}
1.6×10^{-2}	4.1×10^{-3}	42	1.8×10^{-2}	11	1.8×10^{-2}
4.2×10^{-3}	1.6×10^{-2}	56	1.2×10^{-2}	14	1.4×10^{-2}
5.2×10^{-3}	5.1×10^{-3}	57	7.8×10^{-3}	18	8.2×10^{-3}
8.2×10^{-3}	1.9×10^{-3}	48	9.2×10^{-3}	16	9.3×10^{-3}
2.1×10^{-3}	8.0×10^{-3}	64	6.1×10^{-3}	30	6.8×10^{-3}
1.2×10^{-3}	1.1×10^{-3}	110	1.8×10^{-3}	58	1.8×10^{-3}
1.6×10^{-3}	4.2×10^{-4}	92	1.8×10^{-3}	48	1.8×10^{-3}
3.8×10^{-4}	1.7×10^{-3}	110	1.2×10^{-3}	73	1.4×10^{-3}
5.2×10^{-4}	5.3×10^{-4}	150	7.9×10^{-4}	94	8.3×10^{-4}

表 I - 3 - 5 ^{85}Sr の分配係数の測定

原 水 濃 度		グリーンサント		KUR 砂	
Ca^{2+} 濃度 meq / ml	Mg^{2+} 濃度 meq / ml	Kd_{Sr} ml/g	C_{xT} meq / ml	Kd_{Sr} ml/g	C_{xT} meq / ml
5.2×10^{-2}	5.0×10^{-2}	27	7.7×10^{-2}	5.7	8.1×10^{-2}
8.3×10^{-2}	1.8×10^{-2}	24	9.2×10^{-2}	5.1	9.4×10^{-2}
1.6×10^{-2}	8.8×10^{-2}	28	6.0×10^{-2}	6.6	6.8×10^{-2}
1.0×10^{-2}	1.4×10^{-2}	31	1.7×10^{-2}	10	1.8×10^{-2}
1.9×10^{-2}	4.8×10^{-3}	28	2.1×10^{-2}	10	2.2×10^{-2}
4.2×10^{-3}	1.9×10^{-2}	37	1.4×10^{-2}	14	1.5×10^{-2}
5.1×10^{-3}	5.3×10^{-3}	33	7.8×10^{-3}	17	8.2×10^{-3}
8.5×10^{-3}	1.6×10^{-3}	33	9.3×10^{-3}	13	9.4×10^{-3}
1.6×10^{-3}	9.2×10^{-3}	45	6.2×10^{-3}	17	6.4×10^{-3}
1.1×10^{-3}	1.4×10^{-3}	52	1.8×10^{-3}	28	1.9×10^{-3}
1.8×10^{-3}	5.0×10^{-4}	55	2.1×10^{-3}	28	2.1×10^{-3}
4.5×10^{-4}	1.9×10^{-3}	62	1.4×10^{-3}	37	1.6×10^{-3}
5.1×10^{-4}	5.0×10^{-4}	72	7.6×10^{-4}	40	8.0×10^{-4}

第 4 節 結果の考察

前節 3-1 の実験の結果、各交換吸着体に対する Ca^{2+} と Mg^{2+} との平衡定数の平均値が表 I - 3 - 3 に求められたので、これらの値と表 I - 3 - 1, 表 I - 3 - 2 に示された ^{60}Co および ^{85}Sr に対する m_{Ca} , m_{Mg} , n_{Ca} の値を用いて (I-3-18) 式中の $(m_Y/m_X) \cdot (K_{X-Y})^{-n_X}$ について計算を行い、表 I - 3 - 6 に示した。表 I - 3 - 6 に示された $(m_Y/m_X) \cdot (K_{X-Y})^{-n_X}$ の値はどの交換吸着体と、どの核種 (^{60}Co , ^{85}Sr 以外の ^{22}Na , ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{65}Zn , ^{133}Ba についても同様である) との組み合わせでも近似的に 1 とみなすことができる。すると (I-3-18) 式は、(I-3-5) 式の関係を用いて

$$\text{Kd}_{\text{A for Ca, Mg}} \doteq m_{\text{Ca}} \cdot (\text{C}_{\text{xT}})^{-n_{\text{Ca}}} \quad (\text{I-3-19})$$

表 I - 3 - 6 $(m_{Mg}/m_{Ca})(K_{Ca-Mg})^{-n_{Ca}}$ の計算値

イオン交換体	放射性陽イオン	m_{Mg}/m_{Ca}	K_{Ca-Mg}	n_{Ca}	$(m_{Mg}/m_{Ca})(K_{Ca-Mg})^{-n_{Ca}}$
グリーンサンド	^{60}Co	1.4	2.0	0.38	1.1
	^{85}Sr	1.3	2.0	0.31	1.0
K U R 砂	^{60}Co	1.4	1.7	0.67	1.0
	^{85}Sr	1.3	1.7	0.43	1.0

と近似できるはずである。したがって Ca^{2+} (イオン X) と Mg^{2+} (イオン Y) とが共存して放射性陽イオンの分配係数に与える影響は、(I - 3 - 16) 式を用いて Mg^{2+} 濃度を Ca^{2+} 濃度に換算してやれば、 Ca^{2+} のみが存在し、放射性陽イオンの分配係数を与える場合と同じものになるはずである。そこで表 I - 3 - 4, 表 I - 3 - 5 に示した Ca^{2+} , Mg^{2+} 濃度を用いて (I - 3 - 16) 式より $C_{xT} = C_{Ca} + (K_{Ca-Mg})^{-1} \cdot C_{Mg}$ を計算し、対応する分配係数値との関係を図 I - 3 - 2, 図 I - 3 - 3 に示した。

図 I - 3 - 2, 図 I - 3 - 3 は前者が ^{60}Co , 後者が ^{85}Sr に関するもので、どちらもたて軸に分配係数値を、横軸に換算濃度 C_{xT} を両対数で示したものである。

表 I - 3 - 1, 表 I - 3 - 2 に示された m_{Ca} 値、 n_{Ca} 値を用いて各イオン交換吸着体に対応する $Kd_{Co \text{ for } Ca}$ と $Kd_{Sr \text{ for } Ca}$ と Ca^{2+} 濃度との関係を図 I - 3 - 2, 図 I - 3 - 3 に (I - 3 - 1) 式より直線で示した。

図 I - 3 - 2, 図 I - 3 - 3 において前節 3 - 2 で求められた実験値は、 Ca^{2+} のみの影響を示す直線と良く一致することが認められた。

したがって、 Ca^{2+} と Mg^{2+} とが共存して ^{60}Co や ^{85}Sr などの放射性陽イオンの分配係数に与える影響を取り扱う時には、 Mg^{2+} 濃度を $Ca^{2+} - Mg^{2+}$ の平衡定数 K_{Ca-Mg} で除して、 Ca^{2+} 濃度に加えてやれば、 Ca^{2+} のみが単独で存在し、放射性陽イオンの分配係数に影響を与えると置き換えて取り扱っても良いことがわかった。なお、計算はめんどうであるが、(I - 3 - 17) 式を求めたのと同じ手法を用いれば、1 価の Na^+ が共存する時の影響も求めることができる。

また、表 I - 3 - 6 に示したように $(m_Y/m_X) \cdot (K_{X-Y})^{-n_X}$ がほぼ 1 に等しくなったことにより、 Ca^{2+} および Mg^{2+} が単独で放射性陽イオン A の分配現象に影響を与える場合の指標とした m 値、 n 値のうち、同一交換吸着体に対する n 値が Ca^{2+} と Mg^{2+} とについてほぼ等しいことは前章ですでに知ったが、さらに、同一交換吸着体に対する m

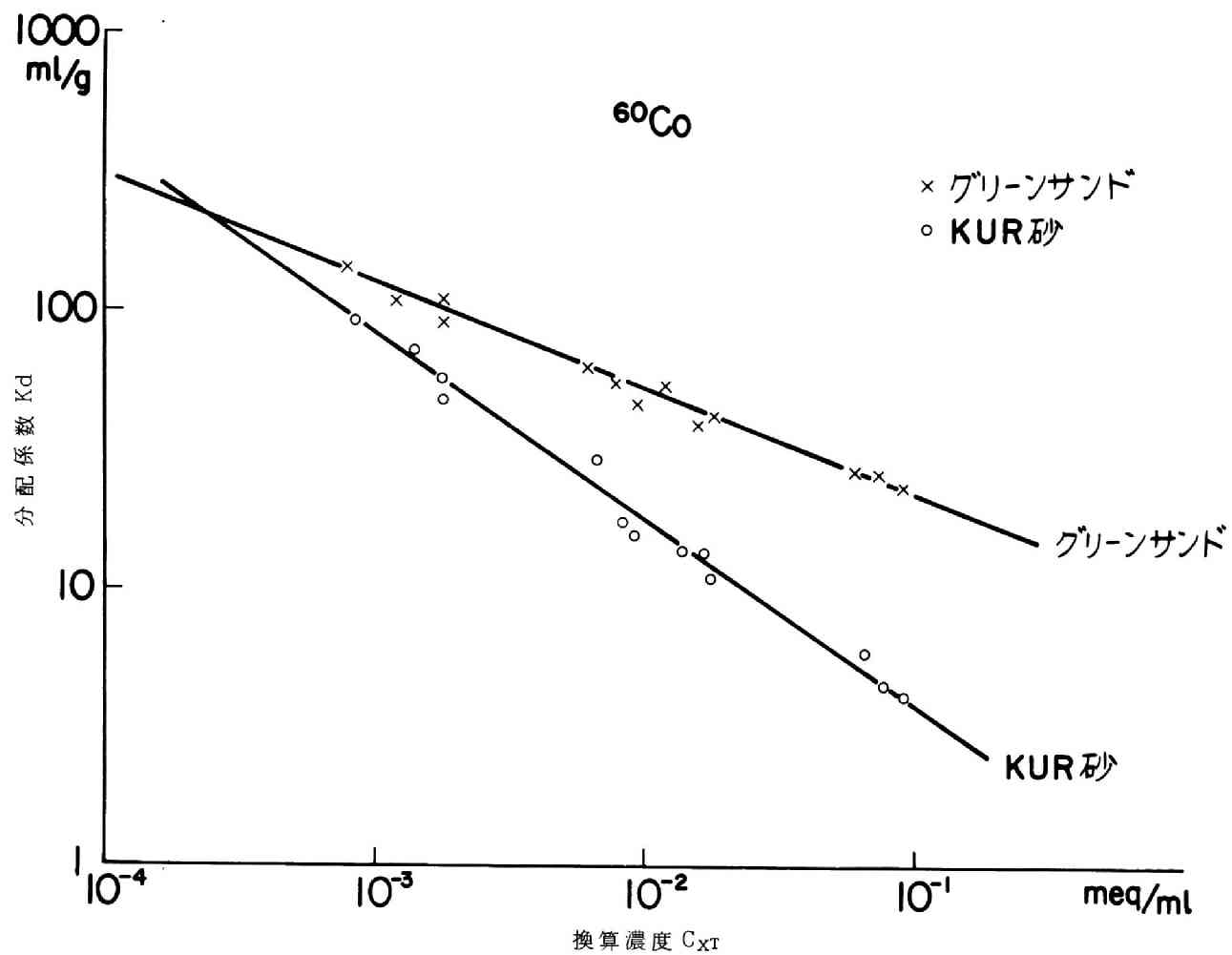


図 1 - 3 - 2 ^{60}Co の分配係数値

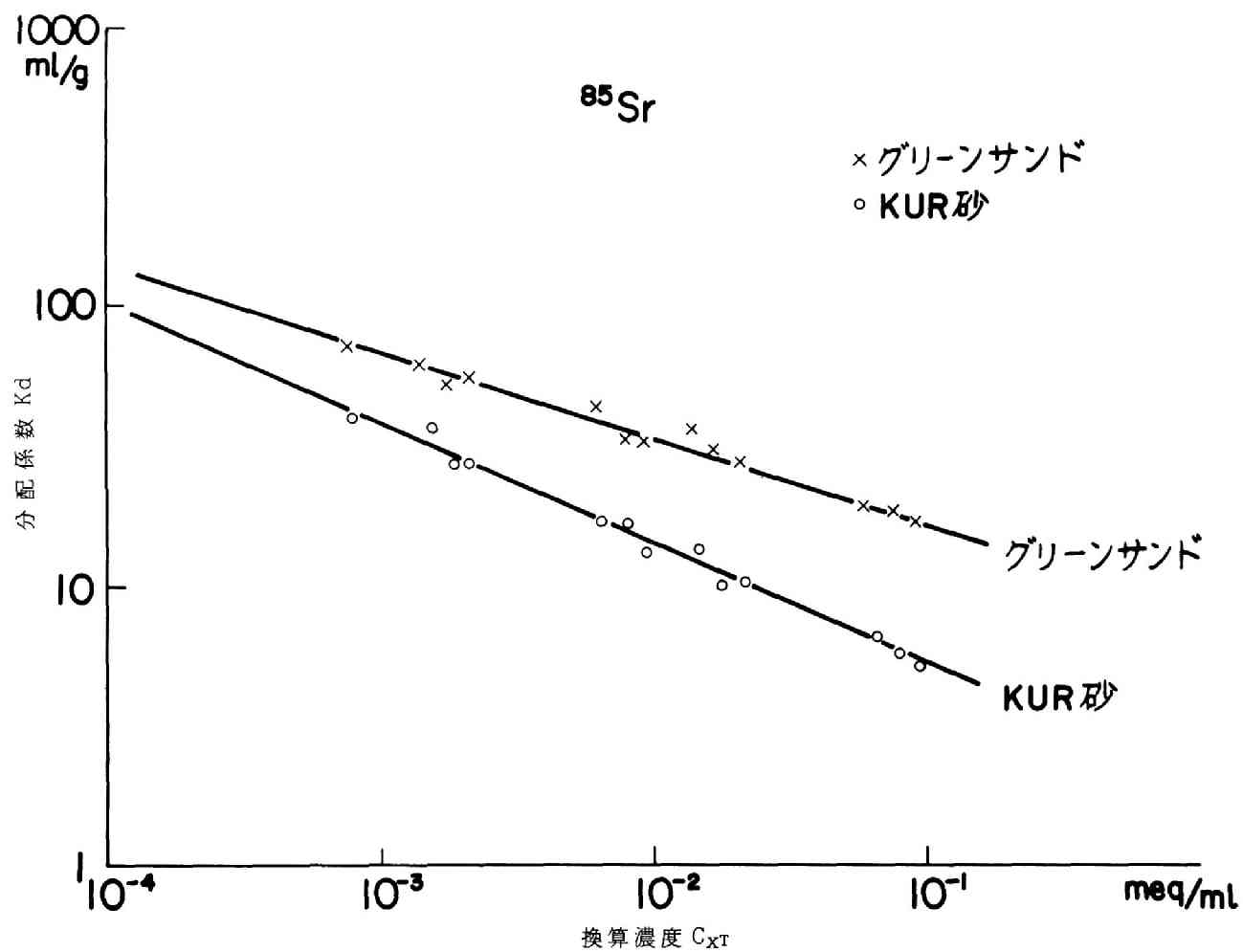


図 I - 3 - 3 ^{85}Sr の分配係数値

値に関しても両イオンの比は両イオン間の平衡定数を n 乗したものにほぼ等しくなっていることを知った。

第5節 結 論

本章では、前章の研究結果をもとに、地下水中の主要陽イオンとして Ca^{2+} と Mg^{2+} とを取り上げ、両イオンが共存して放射性陽イオン（本報では ^{60}Co と ^{85}Sr を用いた）の分配現象に与える影響について研究した。

まず、前章で得られた、1つのイオンのみが単独で放射性陽イオンの分配現象に影響を与える場合の実験結果をもとに、2つのイオンが共存して、放射性陽イオンの分配現象に与える影響について分配モデルを考え、この分配モデルをもとに理論的考察を進め、放射性陽イオンの分配量を得る近似式として（I-3-17）式を得た。さらに（I-3-17）式で示された2つのイオンを Ca^{2+} と Mg^{2+} とであるとして、 Ca^{2+} と Mg^{2+} との場合に成立する近似式（I-3-18）式を得た。

$$Kd_{A \text{ for } X, Y} \doteq m_X \cdot \frac{\{q_X + (m_Y/m_X) \cdot (K_{X-Y})^{-n_X} q_Y\}}{q_{\max}} \cdot (C_{XT})^{-n_X} \quad (\text{I-3-18})$$

（I-3-18）式をもとに X, Y 両イオンすなわち Ca^{2+} , Mg^{2+} の間の平衡定数 $K_{\text{Ca-Mg}}$ (K_{X-Y}) を求める実験と、 Ca^{2+} および Mg^{2+} が共存した状態での放射性陽イオンの分配係数 $Kd_{A \text{ for } \text{Ca, Mg}}$ を求める実験を行った。この結果（I-3-18）式における $(m_Y/m_X) \cdot (K_{X-Y})^{-n_X}$ の項がほとんど1になることを知り、近似式（I-3-19）、（I-3-16'）式を得た。

$$Kd_{A \text{ for } \text{Ca, Mg}} \doteq m_{\text{Ca}} \cdot (C_{XT})^{-n_{\text{Ca}}} \quad (\text{I-3-19})$$

$$C_{XT} \doteq C_{\text{Ca}} + (K_{\text{Ca-Mg}})^{-1} \cdot C_{\text{Mg}} \quad (\text{I-3-16'})$$

（I-3-19）、（I-3-16'）式は Ca^{2+} , Mg^{2+} が共存して放射性陽イオンの分配に影響を与える現象は、 Mg^{2+} 濃度を両イオンの平衡定数で除して、 Ca^{2+} 濃度に加えてやれば、主要イオンとして Ca^{2+} のみが存在すると単純化した現象に置き換わることを意味している。

そこで、 Ca^{2+} と Mg^{2+} とが共存した状態での放射性陽イオンの分配係数を求めた実験結果を（I-3-16'）式で整理した結果、実験結果は（I-3-19）式と良く一致し、

本章で示したように Ca^{2+} のみに置き換えて現象を取り扱うことができることを知った。

また、本章で得られた結果を実際に放射性核種の地中移動の予測に応用する方法については第Ⅱ編第2章で詳しく述べた。

第Ⅰ編 第3章の参考文献

- 1) 筒井天尊，西牧研社；保健物理，**10**，79（1975）。
- 2) 筒井天尊，西牧研社；保健物理，**10**，203（1975）。
- 3) 原子力安全研究協会編；“固体廃棄物処理処分委員会中間報告書”，原安協報告 - 15（1969）。
- 4) 本田雅健；“イオン交換”，南江堂（1962）。
- 5) 井上頼輝；“放射性廃棄物の地中処分に関する基礎的研究”，京都大学学位論文（1970）。
- 6) 日本水道協会；“上水試験方法” 136（1960）。
- 7) 筒井天尊，西牧研社；“放射性核種の土砂への分配に関する基礎的研究”，KURRI-TR-151（1977）。

第4章 強酸性廃液の場合における放射性核種の土砂への分配

第1節 はしがき

わが国においても近年、原子炉施設の増大とともに、原子炉で使用された使用済燃料の再処理が問題となってきた。すでに茨城県那珂郡東海村には動力炉・燃料開発事業団が再処理工場を建設し、運転開始もまじかである。現行の核燃料再処理とは、使用済燃料要素から核燃料物質のプルトニウムとウランを取り出し、他の核分裂生成物および超ウラン元素等を放射性廃棄物として分離する操作であるが、大別すると湿式処理と乾式処理の二つに分類することができる¹⁾。しかし、乾式処理法は技術的に確立していないから当面は湿式処理法が主流となる²⁾。

湿式処理法には Purex 法¹⁾を始めとして種々の方法があるが、ほとんどの処理法において、強硝酸性（～8N）でかつ放射能濃度が高い核燃料再処理廃水（以下再処理廃水と略記）が大量（ウラン1トン当り約400ℓ⁴⁾）に生成される²⁾³⁾。再処理廃水の化学的組成、放射能組成等については Baetslé および Dejonghe⁴⁾ や Amphlett⁵⁾ など^{15) 17)} が発表しているが、ここでは Baetslé および Dejonghe⁴⁾ の発表したものを表 I-4-1、表 I-4-2 に示した。

一般に、低濃度の放射性廃水はその放射能濃度に応じて、凝集沈殿処理法や蒸発濃縮処理法⁶⁾⁷⁾で処理し、処理水を自然界に放出している。それに引き換え、再処理廃水は表 I-4-1、表 I-4-2 でも明らかな

表 I-4-1 再処理廃水の化学組成⁴⁾

	濃 度 (モル)					
	Purex	Butex	TBP-25	Zirflex	Thorex	Hexone
Al	0.004	0.0092	1.2	0.75	0.05	1.6
Fe	0.01	0.0097	-	-	0.01	-
Cr	0.0004	0.0002	-	} < 1 g/ℓ	-	} < 1 g/ℓ
Ni	0.0002	0.0002	-		-	
Zr	-	-	-	0.55	-	-
H	2.36	3.00	0.4	1.0	3.0	-0.2
NO ₃ ⁻	2.40	3.00	4.0	2.3	3.02	6.0
F ⁻			-	3.2	0.02	-
NH ₄ ⁺		-	-	-	-	1.4

ように強硝酸性で、かつ放射能濃度が高いため現在のところはまずそのまま、または中和してタンク貯留しておき、5年程度中間貯留した後ガラス化等の固型化処理を行

なうのが主流の考えである^{15) 16) 17)}。

表 I - 4 - 2 再処理廃水中の核分裂生成物⁴⁾

核 種	半減期	放 射 能						全量 ppm 放射性 + 非放射性
		90 日 後		1.25 年 後		3.25 年 後		
		($\mu\text{C}/\text{ml}$)	(%)	($\mu\text{C}/\text{ml}$)	(%)	($\mu\text{C}/\text{ml}$)	(%)	
^{137}Cs	33 yr	2.0×10^4	1.64	1.95×10^4	4.5	1.88×10^4	14.3	250
^{90}Sr	28 yr	2.3×10^4	1.88	2.24×10^4	5.16	2.12×10^4	16.2	115
^{147}Pm	2.5 yr	9.0×10^4	7.36	6.8×10^4	15.7	3.92×10^4	29.9	96
^{144}Ce	285 d	6.9×10^5	56.5	2.8×10^5	65.2	4.8×10^4	36.6	242
^{144}Pr								
^{95}Zr - ^{95}Nb	65 d	2.7×10^5	22.1	5.5×10^2	1.27	2.3	-	9.1
^{140}Ba - ^{140}La	12.8 d	5.2×10^3	0.41	-	-	-	-	8.0
^{103}Ru - ^{103}Rh	40 d	3.5×10^4	2.87	63.7	0.14	-	-	1.5
^{106}Ru - ^{106}Rh	1 yr	7.2×10^4	5.9	3.6×10^4	8.3	4.0×10^3	3.3	21
^{89}Sr	50 d	1.6×10^4	1.32	1.0×10^2	0.23	-	-	1

タンク貯留にあたっては、タンクの材質を特殊ステンレス鋼とし、かつタンクからの漏洩にそなえて、コンクリートを用いた防護室内に設置され十分な防護対策がとられているが、このタンク貯留中において、再処理廃水が地震、応力腐蝕等によるタンクの損傷等の仮想事故により地中に漏洩した場合を想定し、漏洩した廃水とその中に含まれる放射性核種との地中での挙動を十分に調査しておく必要がある。

また、再処理廃水でない通常の放射性廃水でも、その化学的液性が強酸性の廃水が生ずる（たとえば、蒸発缶内の酸洗浄等）ことがあり、強酸性溶液が放射性核種の土砂への分配におよぼす影響の程度を定量化することは重要である。

一般に放射性核種が地下帯水層に混入した場合には、普通放射性核種は土壌のイオン交換能により分配されてきわめてゆっくりと地中を移動し、その分配の度合いは本編第2章、第3章ですでに研究したように地下水中に主として存在する Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ などのことによって影響される^{8) 9)}。ところが、再処理廃水等の場合は硝酸濃度が非常に高い（ $\sim 8\text{N}$ ）ため、地下帯水層を構成する土砂が硝酸に侵され土壌の持つ吸着交換能が減少する危険性とか、多量の H^+ が放射性核種の土砂への分配に影響を与えとかいった問題が新たに生じてくる。

そこで本章では、まず、再処理廃水の模擬廃水として、放射性核種として環境安全上危険で、かつ本編第2章で明らかにしたように土砂への分配の度合いが両極端の ^{90}Sr と ^{137}Cs (^{90}Sr は分配力が小さく、 ^{137}Cs は分配力が非常に大きい⁹⁾)とを添加した1N硝酸溶液を作成した。

酸性溶液の場合に、放射性核種の分配におよぼす影響は H^+ 濃度の影響が重要で、水中あるいは土から溶出する成分と反応する SO_4^{2-} のような系の場合は複雑になるのでここでは考察しなかった。また酸に溶解した成分が H^+ 濃度の減少によって塩基性塩の析出するような系は考慮しなかった。そしてこの場合に最も簡単な系となる硝酸を選んだ。

そしてこれらの模擬廃水を、土砂を充填したカラムに通水し、流出曲線を求め、 ^{90}Sr および ^{137}Cs の土砂への分配の様子を調べた。

つぎに硝酸溶液が帯水砂層に及ぼす化学的影響を調べるため、カラムに砂をつめ、ここへ1N硝酸溶液をつめ砂からの Ca^{2+} および Mg^{2+} の溶出量を調べた。さらに Ca^{2+} および Mg^{2+} が溶出なくなり完全に硝酸溶液で侵された砂層に、新たに放射性核種が混入した場合を想定して通水実験を行い、硝酸で侵された砂層のイオン交換能力の変化を調べた。

最後に、硝酸溶液が微量放射性核種の土砂への分配におよぼす影響を調べるために、0.5N～0.0005N程度の数種類の硝酸溶液を作成し、そこへ ^{85}Sr を添加したものを原水とし、この原水を用いてカラムへの通水実験を行い、 H^+ 濃度が放射性核種の分配に与える影響を調べた¹⁰⁾。

第2節 再処理廃水中核種の砂層中での移動

再処理廃水中核種の砂層への分配を調べる場合に、本編第2節、第3節で行ったようなピーカ内でのバッチ法による実験を行うと、硝酸溶液によって土砂から溶出した大量の Cs^{2+} や Mg^{2+} (この現象に関しては本章第3節において詳しく述べる)がピーカ外すなわち系外に除去されないため、得られた実験結果が実際の地下帯水層での状況と大きく異なる。そこで本節においては、土砂から溶出した Ca^{2+} と Mg^{2+} を系外に除去するため図I-4-1に示したようなカラムを用いて通水実験を行い、カラム出口より採取した流出水の放射能濃度等を測定して流出曲線を求め、この流出曲線より再処理廃水中核種の砂層中での移動を知った。

試料土としては、日本原子力研究所東海研究所より採取した砂を用いた。

この砂の密度は 2.59g/cm^3 、空隙率は 0.409、交換容量は 0.006 meq/g である。また、同研究所構内地下水中には Ca^{2+} が 88 ppm (Ca^{2+} として)、 Mg^{2+} が 4.5 ppm (Mg^{2+} として)、 Na^+ が 6.0 ppm (Na^+ として) 含まれている³⁾。

放射性核種としては環境安全上問題である ^{90}Sr と ^{137}Cs とを用い、しかも表 I-4-2 より、放射性核種および安定同位元素が廃水中に合せて数百 ppm も存在する可能性があるため、表 I-4-2 を参考にして、 ^{90}Sr については carrier free のものと carrier として 120 ppm (Sr^{2+} として) の Sr を加えたものと、 ^{137}Cs については同じく carrier free のものと carrier として 250 ppm (Cs^+ として) の Cs を加えたものを用いた。

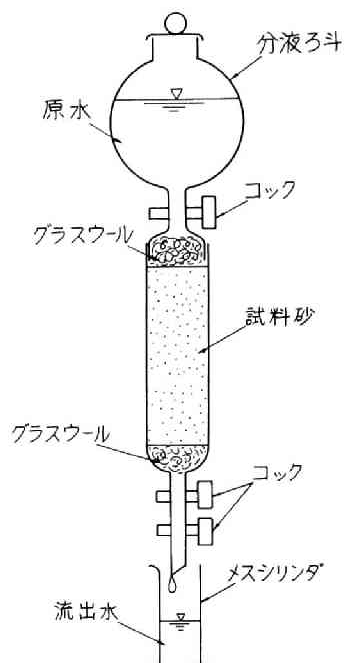


図 I-4-1 カラム実験装置

2-1 実験方法

2-1-1 模擬廃水

再処理廃水の入手は現在のわが国においては不可能であるため模擬廃水を作成して実験を行った。

再処理廃水の硝酸濃度は表 I-4-1 に示したように処理方法によって種々の濃度を示しているが、ほとんどが 1N 以上である。しかるに本節で後述するように、たとえば 8N 硝酸を用いて分配実験を行っても、硝酸濃度が高すぎ放射性核種の分配が全くみられない。分配について考察する立場から本節の実験に用いる模擬廃水の硝酸濃度は 1N とすることにした。

まず 1N 硝酸溶液を作成し、ここへ、それぞれの濃度が $10^{-2}\text{ }\mu\text{Ci/ml}$ となるように ^{90}Sr と HTO とを添加して、carrier free の ^{90}Sr 入りの模擬廃水とした。この時に一緒に添加した HTO は水分子を構成する水素の一部が放射性同位元素の三重水素に置き換わったものであり、廃水自体の挙動を知るためのトレーサとして用いた。

さらに、carrier free の ^{90}Sr 入りの模擬廃水作成の操作に加えて硝酸ストロチュムを廃水中濃度が Sr^{2+} として 120 ppm になるように添加して carrier 120 ppm (Sr^{2+}

として) ^{90}Sr 入り模擬廃水とした。

同様に、 ^{90}Sr のかわりに ^{137}Cs を、硝酸ストロチウムのかわりに硝酸セシウムを廃水中濃度が 250 ppm (Cs^+ として) になるように添加して、それぞれ carrier free ^{137}Cs 入り模擬廃水、carrier 250ppm (Cs^+ として) ^{137}Cs 入り模擬廃水とした。

2-1-2 通水実験

図 I-4-1 で示したようなカラムに試料砂を空隙率 0.41 で充填した。試料砂は ^{90}Sr 入り模擬廃水を通水する時には 200g、 ^{137}Cs 入り模擬廃水を通水する場合には 100g を用いた。

カラムに純水を通水しながらカラム中の気泡を追いつ出した。ついで、本節 2-1-1 で述べた 4 種の模擬廃水を、それぞれ、対応する重量の試料砂が充填されたカラムに通水した。模擬廃水の通水速度は ^{90}Sr の場合は 3 ml/min、 ^{137}Cs の場合は 10 ml/min であった。

カラム下部より流出した流出水をメスシリンダーで定量づつ採取した。 ^{90}Sr の場合は 10 ml づつ採取し、そのうち 1 ml を ^{90}Sr の放射能濃度の測定に、残りを HTO の放射能濃度の測定に用いた。 ^{137}Cs の場合は、carrier 250 ppm の時は 10 ml づつ採取して ^{90}Sr の時と同じような測定を行い、carrier free の時には、ある程度 ^{137}Cs が砂に分配されるため、始め 10 ml づつ 10 回採水し、HTO の測定を用い、その後は 100 ml づつ採水し、そのうち 1 ml を ^{137}Cs の測定に用いた。なお carrier free の ^{137}Cs 入りの模擬廃水の通水実験の場合、 ^{137}Cs の流出が模擬廃水よりかなり遅れるため、 ^{137}Cs の流出し始める流出量の目安とするため別にビーカーに試料砂 100g を取り、ここへ carrier free ^{137}Cs 入り模擬廃水を約 100 ml 添加して、24 時間接触後の添加模擬廃水中の ^{137}Cs の濃度変化より、この系における ^{137}Cs の分配係数の測定を行った。

^{90}Sr および ^{137}Cs の測定は流出水 1 ml を蒸発乾固して、ガスフローカウンタで測定した。この場合 HTO の β エネルギーはきわめて低い¹¹⁾ ので計測されない。

HTO の測定は ^{90}Sr および ^{137}Cs の計測に使用した残りの流出水を蒸留して、 ^{90}Sr および ^{137}Cs を分離した後、液体シンチレーションカウンタで測定した。

2-2 実験結果および考察

通水前の各模擬廃水の放射能濃度を Co 、各流出水の放射能濃度を C として濃度比

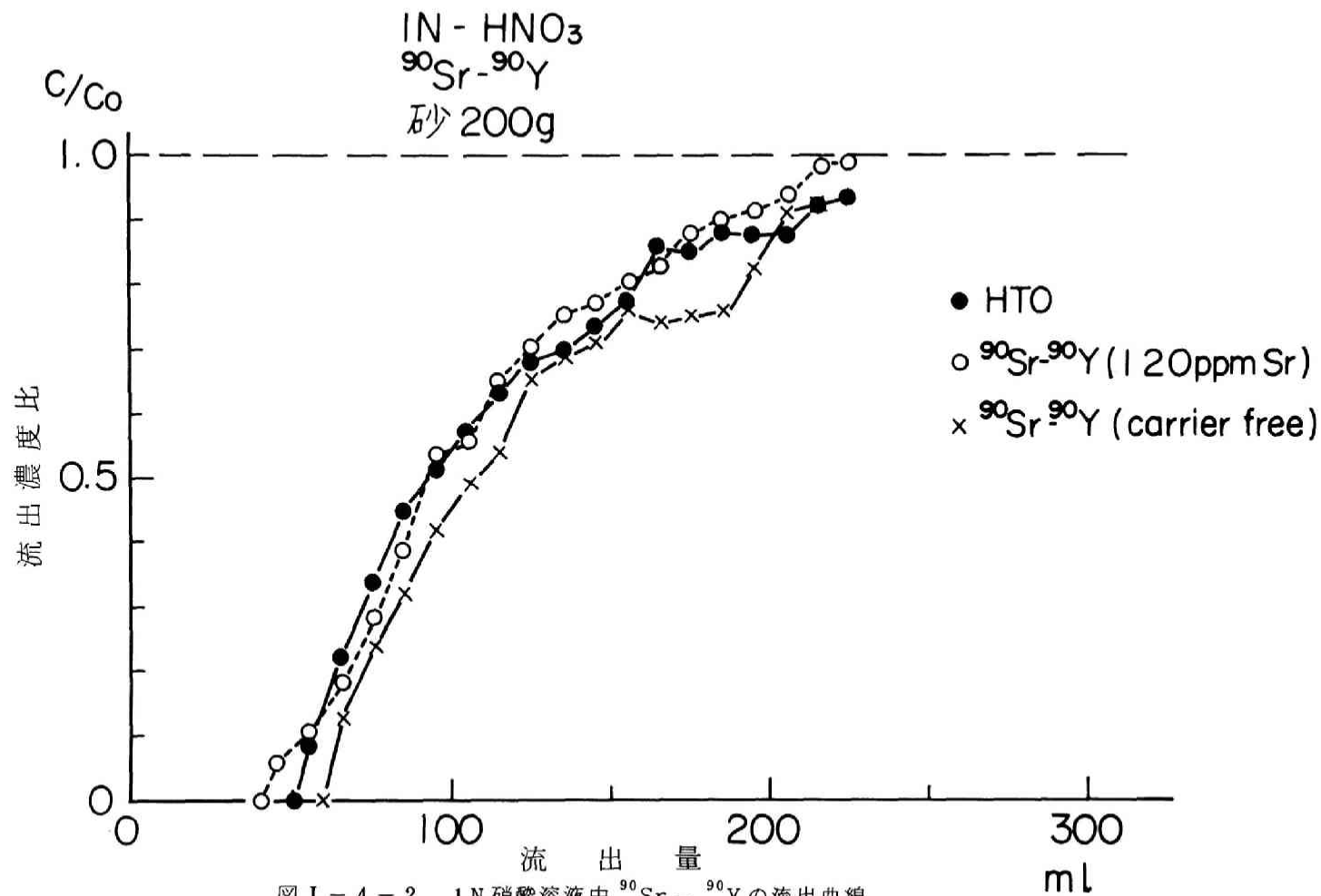


図 I - 4 - 2 1N 硝酸溶液中 ⁹⁰Sr - ⁹⁰Y の流出曲線

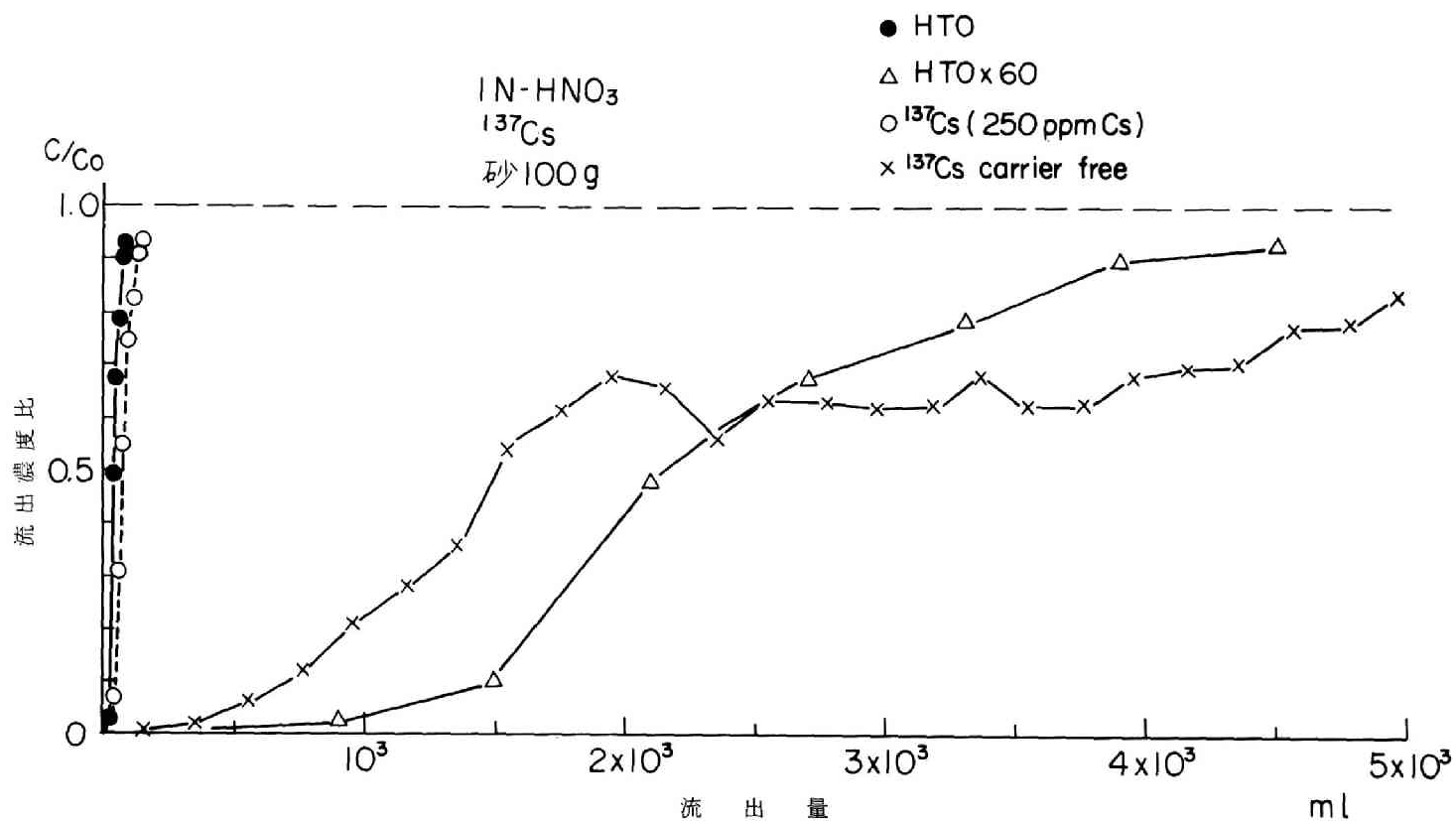


図 I - 4 - 3 1N 硝酸溶液中 ¹³⁷Cs の流出曲線

C/Coを計算し、この時の流出量との関係をグラフに描くと、図 I-4-2, 図 I-4-3 のような流出曲線が得られた。

図 I-4-2 は ^{90}Sr 入りの模擬廃水に関するもので、同時に示した HTO の流出曲線は、carrier free のものと carrier 120 ppm (Sr^{2+} として) 入りのものに対応する 2 本の流出曲線が得られたが、両通水実験ともカラム寸法をはじめとして、全て同じ条件になるようにして行っただけでほとんど同じ流出曲線が得られた。そこで図では carrier free の場合の HTO の流出曲線のみを示した。

普通 ^{90}Sr の測定を行う場合、娘核の ^{90}Y が 3 価のイオンで ^{90}Sr とは違った挙動をするため¹⁰⁾、試料を 2 週間放置して放射平衡になってから測定しなければならないが、 H^+ が高いため ^{90}Y がイオン状として流出したらしく、2 週間を経ても、試料の放射能の強さの変化は見られなかった。

図 I-4-2 によれば、 ^{90}Sr の移動状態は carrier free の場合も、carrier 120 ppm (Sr^{2+} として) 入りの場合も、HTO の移動状態すなわち模擬廃水自体の移動状態とほぼ同じ状態を示し、carrier free の場合にやや遅れが見られる程度で、結局 1N 硝酸溶液に ^{90}Sr が含まれて移動する場合には、 ^{90}Sr は砂層に分配されず硝酸溶液と同じ速度で移動することがわかった。

図 I-4-3 は ^{137}Cs 入りの模擬廃水に関するもので、やはり HTO の流出曲線は carrier free の時のものを代表として用いた。

図 I-4-3 によれば ^{137}Cs の溶出曲線は carrier 250 ppm 入りの時は HTO の流出曲線よりやや右より、すなわち廃水自体の移動よりも ^{137}Cs の移動がやや遅れ、その遅れの度合いは同一濃度比が得られる時の流出量の割り合いから求めて約 2 倍 ($K_f \div 2$) の時間を要することがわかった。一方 carrier free の場合はさらに遅れが目立ち同じく遅れの度合いを図より求めると、 ^{137}Cs の移動には廃水自体の移動よりも 50 ~ 60 倍 ($K_f \div 50 \sim 60$) 程度の時間が要することがわかった。また、この場合の ^{137}Cs の流出点における流出量を知るための目安としておこなったバッチ法による試験結果では、24 時間経過後の ^{137}Cs の分配係数は 16 ml/g と得られた。この値より本編第 1 章第 2 節の (I-1-20) 式で示された K_f 値を求めると $K_f \div 60$ となった。図 I-4-3 に示された HTO の流出曲線を横へ 60 倍引き伸ばした流出曲線を図 I-4-3 に示した。バッチ法で分配係数を求めた場合には、前述したように、砂から溶出した Ca^{2+} や Mg^{2+} が系外に除去されないため、実際の地下帯水層における状態と異なった結果が得られると考えたが、図 I-4-3 によれば、HTO の流出曲

線を横へ60倍引き伸ばした予測曲線は carrier free の ^{137}Cs の流出曲線と比較的良好に合っている、すなわち ^{137}Cs に関しては、 K_f 値を用いて得られた予測曲線は実用上さしつかえない程度で実際の流出曲線と一致することが確認できた。

しかし、実験に使用した試料砂が採取された日本原子力研究所東海研究所において強酸性でない通常の中、低レベルの廃水に含まれる ^{90}Sr および ^{137}Cs は、地下水に漏洩した場合それぞれ地下水の約 $1/15$ および $1/1200$ の移動速度を示すことが予測される³⁾のにくらべれば、再処理廃水中に含まれる ^{90}Sr および ^{137}Cs は非常に早く移動し、一般に土砂に多く分配される⁸⁾ carrier free の ^{137}Cs の場合には、地下水の移動速度の約 $1/50 \sim 1/60$ の移動速度を示し、carrier 250 ppm (Cs^+ として) 入りになると、廃水とほとんど^(同じ)速度で移動することがわかった。

したがって、本実験で用いた 1N 硝酸溶液よりもさらに硝酸濃度が高い再処理廃水が地下帯水層に漏洩した場合は、帯水層を構成する土砂と硝酸が反応して、 H^+ 濃度が低下するまでは土砂の有するイオン交換能は期待できないことがわかった。

なお再処理廃液の硝酸濃度が最高と考えられる 8N 硝酸溶液を用いてビーカー内でバッチ式の分配実験をあらかじめ行ったが、carrier free, carrier 入りにかかわらず ^{90}Sr , ^{137}Cs とともに土砂への分配はまったくなかった。

第3節 硝酸溶液が土砂におよぼす化学的影響

前節の実験結果から再処理廃水のように強硝酸廃水が帯水層を移動する時には、廃水中に含まれる放射性核種はほとんど分配されずに帯水層を通過することがわかった。

そこで本節ではこのように強い影響を持つ強硝酸性廃液に注目して、強硝酸性廃液と土砂とを接触させた場合に土砂がどのように変化するか、また、完全に硝酸で侵された土砂がなおかつ放射性核種を分配させる能力を有するか否かについて実験的研究を行った。

3-1 砂からの Ca および Mg の溶出

強濃度の硝酸溶液と砂とを接触させると、強濃度の H^+ のために、砂に吸着された Ca^{2+} や Mg^{2+} が溶離されるばかりでなく、砂に混入している長石、石灰石等の鉱物質も溶解されることが予測できる³⁾。そこでカラムに試料砂をつめ、そこへ 1N 硝酸溶液を通水して、流出水の Ca^{2+} および Mg^{2+} 濃度を測定した。

試料砂としては前節の実験と同様に、日本原子力研究所東海研究所構内より採取した砂を用いた。

3-1-1 実験方法

図 I-4-1 のようなカラムに試料砂 100g を空隙率 0.41 で充填した。このカラムに 1N 硝酸溶液を通水し、流出水をメスシリンダで採取した。採水の間隔は、はじめは、10ml ずつ 100ml まで、それ以後 300 ml までは 50 ml ずつで行った。ここで Ca^{2+} および Mg^{2+} の流出量の増加の割合が低下したため 1 時間通水を休止し、また 50 ml ずつ 500ml まで採水し、流出水に Ca^{2+} および Mg^{2+} がほとんど検出されなくなったので 20 時間休止し、その後再び 50 ml ずつ 700 ml まで採水した。なお、この時の通水速度は 5ml/min であった。

以後は 1 日に約 1～2 回 50 ml ずつ採水しながら、除々に採水間隔を広げつつ、流出水から Ca^{2+} および Mg^{2+} が検出されなくなるまで、約半年間実験を継続した。

各採取水について H^+ 濃度は 1/10N カ性ソーダ溶液を用いて中和滴定法で求め、 Ca^{2+} および Mg^{2+} 濃度は、EDTA 法¹²⁾で全硬度として求めた。

3-1-2 実験結果および考察

流出水中の H^+ 濃度を流入水中の硝酸濃度 Co (一定値) との濃度比 C/Co で表わし、流出量との関係を図 I-4-4 に示した。図 I-4-4 にはさらに、1N 硝酸の通水実験の前にあらかじめ、水道水に HTO を約 $10^{-2} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ 添加したものを砂を充填し終えたカラムに通水し、カラム内を通常の水が通過する時の様子を示す流出曲線としての HTO 流出曲線を得たので、これを併せて示した。

図 I-4-4 によれば、硝酸濃度の流出曲線の立ち上がり部分の方が HTO の立ち上がり部分よりも早く流出し、以後逆転して、硝酸濃度の流出曲線の方が少し遅れるのがわかった。これは、おそらく 1N 硝酸溶液の密度が 1.1 と高いため、いわゆる密度流をおこして、拡散せず¹³⁾、カラム内を HTO 入りの水道水よりも早く移動したため立ち上がりが早くあられ、以後は硝酸溶液と砂との化学反応のため硝酸濃度が低下したものと考えられる。また、100ml 程度の通水で HTO の C/Co がほぼ 1 になったのに対し、 H^+ 濃度は C/Co が約 0.95 のまま 100 日程度横ばいを続けたが、これも硝酸溶液と砂との化学反応により H^+ 濃度が低下したものと考えられる。これについては以下で考察を行う。

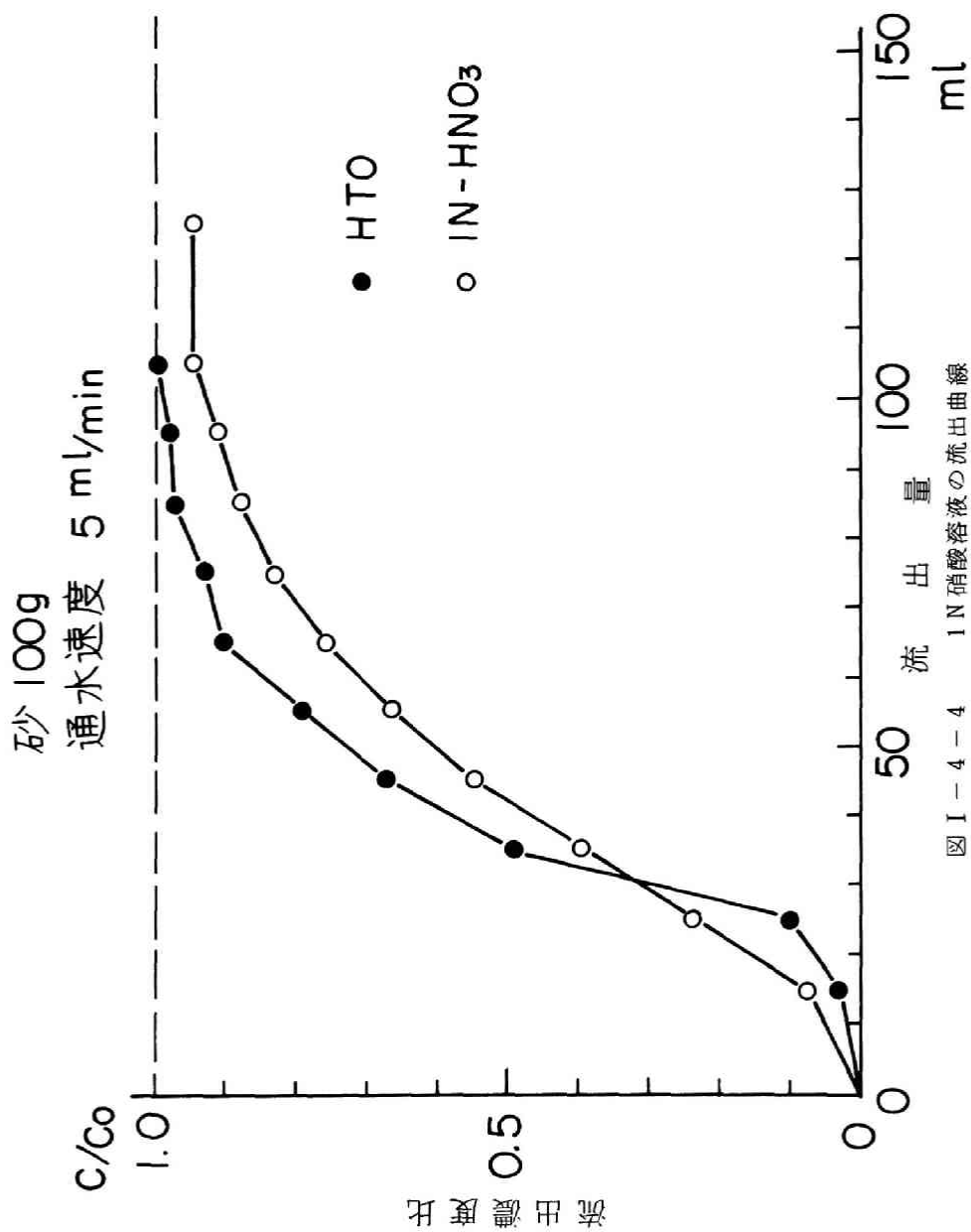


図 I - 4 - 4 1N 硝酸溶液の流出曲線

そこで砂との化学反応により硝酸がどの程度使用されるかの目安とするために、つぎのような大まかな計算を行った。3-1-1の実験方法で述べたように、砂 100 g に 1 N 硝酸溶液を約 500 ml 通水すると、ろ液中に Ca^{2+} および Mg^{2+} の流出が一旦みられなくなったので、この時まで消費された硝酸の量を使用量として計算した。図 I-4-4 で示され HTO の流出曲線と硝酸溶液の流出曲線との差を硝酸の消費量と考えて通水量 500 ml までについて積分して 0.018 mol を得た。したがって、きわめて大まかではあるが、1 N 程度の硝酸溶液では砂 100 g につき 0.02 mol 程度の硝酸が化学反応のため使用されるという目安を得た。

つぎに流出水量と Ca^{2+} および Mg^{2+} の総溶出量との関係を図 I-4-5 に示した。

図 I-4-5 によれば、はじめに流出した 50 ml 中にすでに $\text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+}$ が 32.5 mg (CaCO_3 として) 検出された。この砂の交換容量は 0.006 meq/g であるので、これを砂 100 g に吸着される CaCO_3 の量に換算してみると、

$$0.006 \text{ meq/g} \times 50 \text{ g/eq} \times 100 \text{ g} = 30 \text{ mg (CaCO}_3 \text{ として)}$$

である。

したがって、はじめに 50 ml 流出しただけで、すでに砂の交換容量に匹敵する $\text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+}$ が検出されたことになる。300 ml 流出すると、 $\text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+}$ の検出がほとんどなくなるので、1 時間放置したわけであるが、この結果また新たに $\text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+}$ の検出を見た。さらに 200 ml ほど通水すると $\text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+}$ は再び検出されなくなった。そこで 1 日放置してから 200 ml 通水するとはじめは $\text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+}$ の検出を見るがしだいに検出されなくなる。これをくり返していくと、ついには 1 週間放置してから通水してもほとんど検出されなくなる。

この様子を図 I-4-6 に示した。図 I-4-6 は、横軸に通水し始めてからの日数をとった。

図 I-4-5、図 I-4-6 より明らかなように、はじめは通水量が支配的であるが、すぐに接触時間が支配的となっている。そして砂の全交換容量は CaCO_3 として 30 mg しかないのに、160 日後には試料砂から溶出した $\text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+}$ 量が 1500 mg (CaCO_3 として) と交換容量の 50 倍にもなっていることから、試料砂には、石英質ばかりでなく、長石、石灰石等の硝酸溶液と化学反応を起す鉱物が含まれていることがわかった³⁾。また、肉眼で観察すると、160 日後の試料砂は半透明に見え石英を主とす

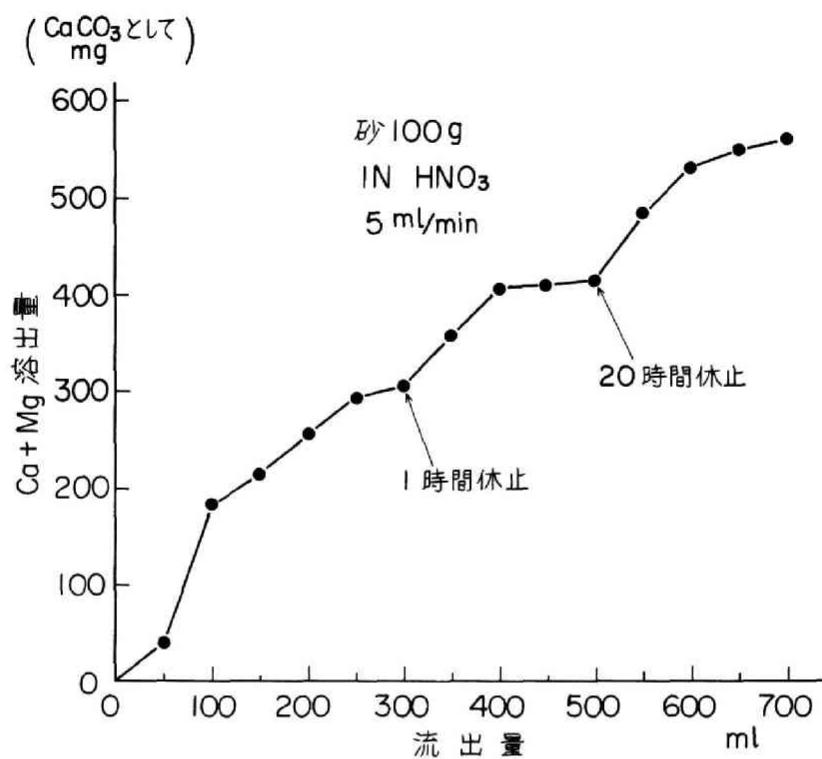


図 I - 4 - 5 硝酸溶液が土砂におよぼす影響 (1)

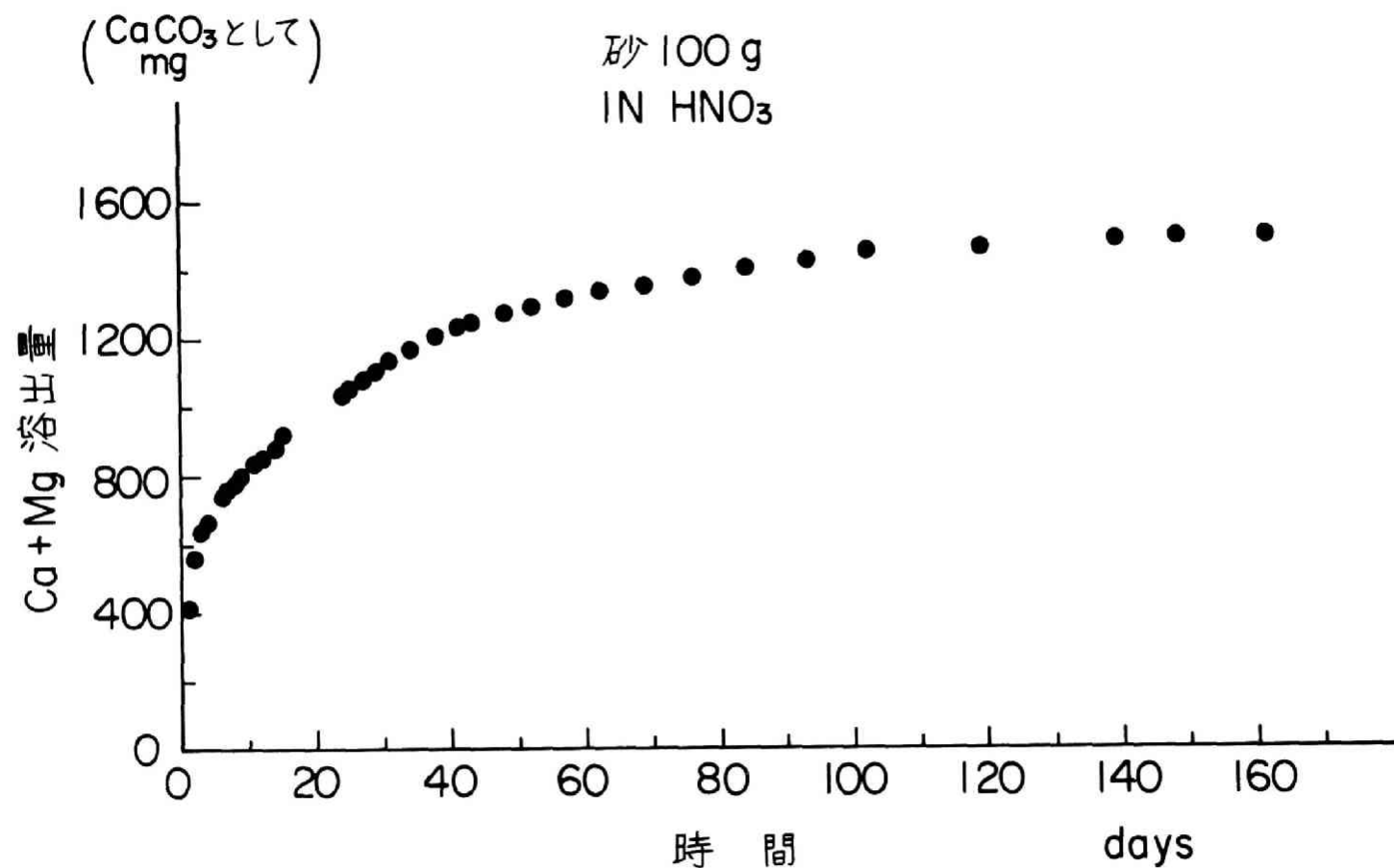


図 I - 4 - 6 硝酸溶液が土砂におよぼす影響 (2)

る不溶性のものが大部をしめるようになることがわかった。

3-2 硝酸溶液で侵された土砂に対する微量放射性核種の分配

通常の帯水層に再処理廃水のような硝酸濃度の高い廃水が混入すると、土砂の表面および土砂自身から大量の Ca^{2+} および Mg^{2+} が溶出し、土砂の長石、石灰石なども溶解することがわかった。そこで、すでに硝酸溶液で侵された帯水層中にあとから、微量の放射性核種が混入した場合、放射性核種がどのような移動状態を示すか、また帯水層中の土砂が、硝酸に侵される以前のように放射性核種の移動速度を遅らす能力を有するかどうかを調べた。

硝酸溶液で完全に侵された土砂の表面に存在する交換基は完全に H^+ で置換されているものと考えられる¹⁰⁾。地下帯水層において表面に存在する交換基が H^+ で置換されている土砂に、放射性核種が混入した、含まれる陽イオンが主として Ca^{2+} や Mg^{2+} である地下水が接触すると、 Ca^{2+} や Mg^{2+} などとのイオン交換で溶出した H^+ は前方におし流され、放射性核種と Ca^{2+} や Mg^{2+} などについてのみの交換現象がおこる。しかるに、ピーカ内で同じ状態で土砂と地下水とを接触させると、溶出した H^+ はピーカ内の地下水中に溶存するため、 H^+ と Ca^{2+} や Mg^{2+} などのイオンで支配されることになり、地下帯水層の状態とは一致しない。

そこで、本項の実験においても、地下帯水層と同じ状態であると考えられるカラムより得られた流出曲線から直接、遅れの係数 K_f 値を求めた。

試料砂としては、京都大学原子炉実験所構内の地下帯水層より採取した KUR 砂を用いた。この砂は密度が 2.47g/ml 、交換容量が 0.031meq/g である。

同様に構内の地下帯水層より採取した地下水を試水として用いたが、この試水には Ca^{2+} が 12.0ppm (Ca^{2+} として)、 Mg^{2+} が 8.7ppm (Mg^{2+} として)、 Na^+ が 20.5ppm (Na^+ として) 含まれている。

放射性核種としては ^{90}Sr と ^{137}Cs とを用いた。

3-2-1 実験方法

図 I-4-1 で示したようなカラム 4 本に KUR 砂を 150g づつ空隙率 0.45 で充填した。

このうち 2 本のカラムに 2N 硝酸溶液を約 500ml/day の速度で約半年間通水し、カラムから Ca^{2+} および Mg^{2+} が流れ出なくなるのを確認した。このとき KUR 砂は肉眼でも半透明に見えた。この後純水を用いて、カラム内の空隙中の 2N 硝酸溶液を追い出し

た。

残りの2本のカラムは、硝酸溶液に侵されない帯水層のかわりとするため、放射性核種を混入していない試水（採水した地下水）を通水して気泡を追い出した。

試水に、 ^{90}Sr と ^{137}Cs とを別々に約 $10^{-2}\mu\text{Ci}/\text{ml}$ 添加して、2種の原水を作成した。なおこれらの原水には同時に原水のトレーサとして本章第2節の実験の際説明したHTOを約 $10^{-2}\mu\text{Ci}/\text{ml}$ 添加した。

原水を準備のととのったカラムに $5\text{ml}/\text{min}$ の速度で通水した。流出水の採取は 100ml ごとに分取し、 ^{90}Sr または ^{137}Cs の定量はGM計数法によった。なお、はじめの 200ml までは 10ml ずつ採取し、蒸留により ^{90}Sr などの放射性核種を分離してからHTOの濃度を液体シンチレーションカウンタで計測した。

^{137}Cs の通水実験においては、硝酸で侵された砂層についても、また硝酸に侵されない砂層についても、約 10ℓ 通水しても ^{137}Cs が流出水に検出されなかったため、 10ℓ 通水後、カラム上部の砂 10g ずつを取り出し、砂に分配されている ^{137}Cs を 1N 塩酸溶液を用いて溶出させ、その分配量を測定した。

また ^{90}Sr に関しては硝酸に侵されていないKUR砂を 10g ずつピーカにとり、ここへ ^{90}Sr 入りの原水 200ml を添加して、それぞれ24時間放置後の分配係数を測定して、本編第1章第2節の（I-1-20）式で示された遅れ係数 K_f 値¹⁴⁾を計算して理論流出曲線を求めて、実測流出曲線との比較も併せて行った。

3-2-2 実験結果および考察

a) $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ の移動状態

^{90}Sr の娘核 ^{90}Y は半減期が2.7日と非常に短いため、流出水を採取後すぐに放射能濃度を測定し、さらにこの試料を ^{90}Sr と ^{90}Y とが平衡状態に達する2週間後に測定し、その結果から流出水中の ^{90}Sr と ^{90}Y との濃度を決定した。

原水中放射能濃度を C_0 とし、各流出液の放射能濃度を C として濃度比 C/C_0 を計算し、流出量との関係を図に示すと図I-4-7、図I-4-8のようになった。

図I-4-7は硝酸溶液で侵されていない帯水層に対する $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ の移動状態および原水のトレーサのHTOの移動状態を示したものである。このうち ^{90}Sr に関してみると、ピーカ内での分配実験の結果、 ^{90}Sr の分配係数値として $33\text{ml}/\text{g}$ が得られた。本編第1章第2節の（I-1-20）式で示した井上の遅れ係数 K_f 値¹⁴⁾は、

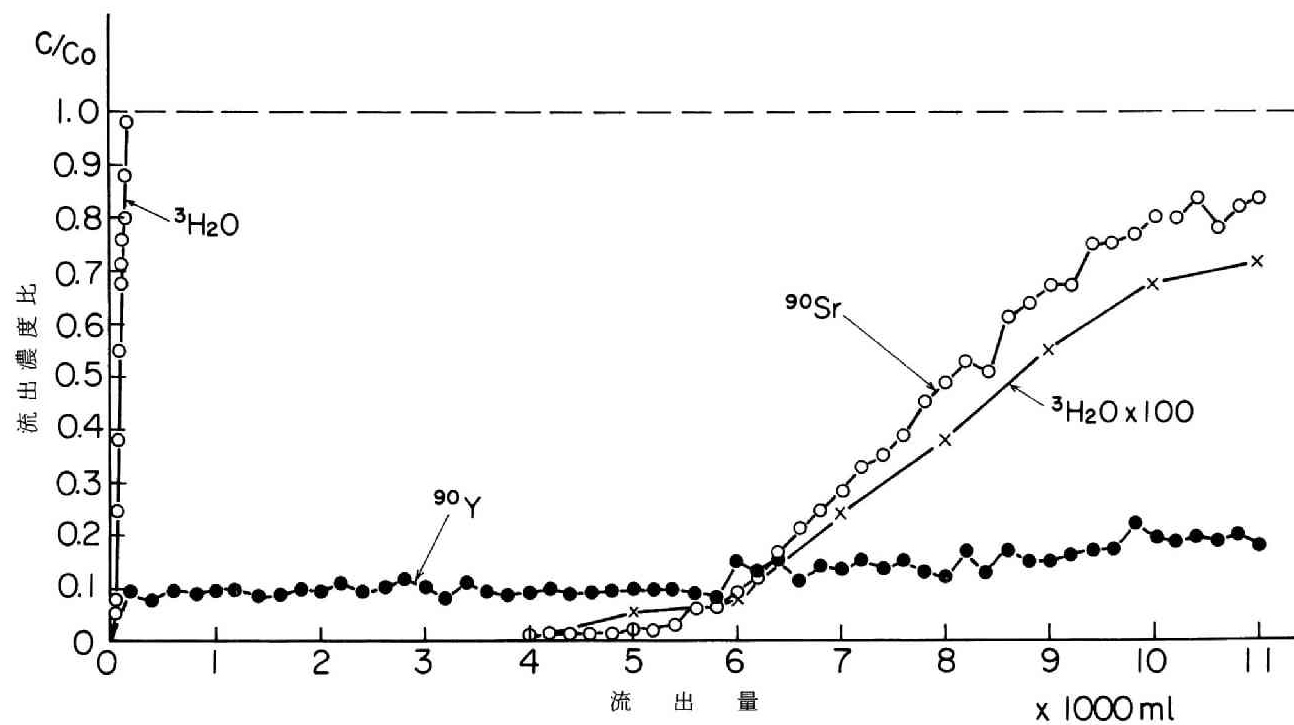


図 I - 4 - 7 ^{90}Sr - ^{90}Y の流出曲線

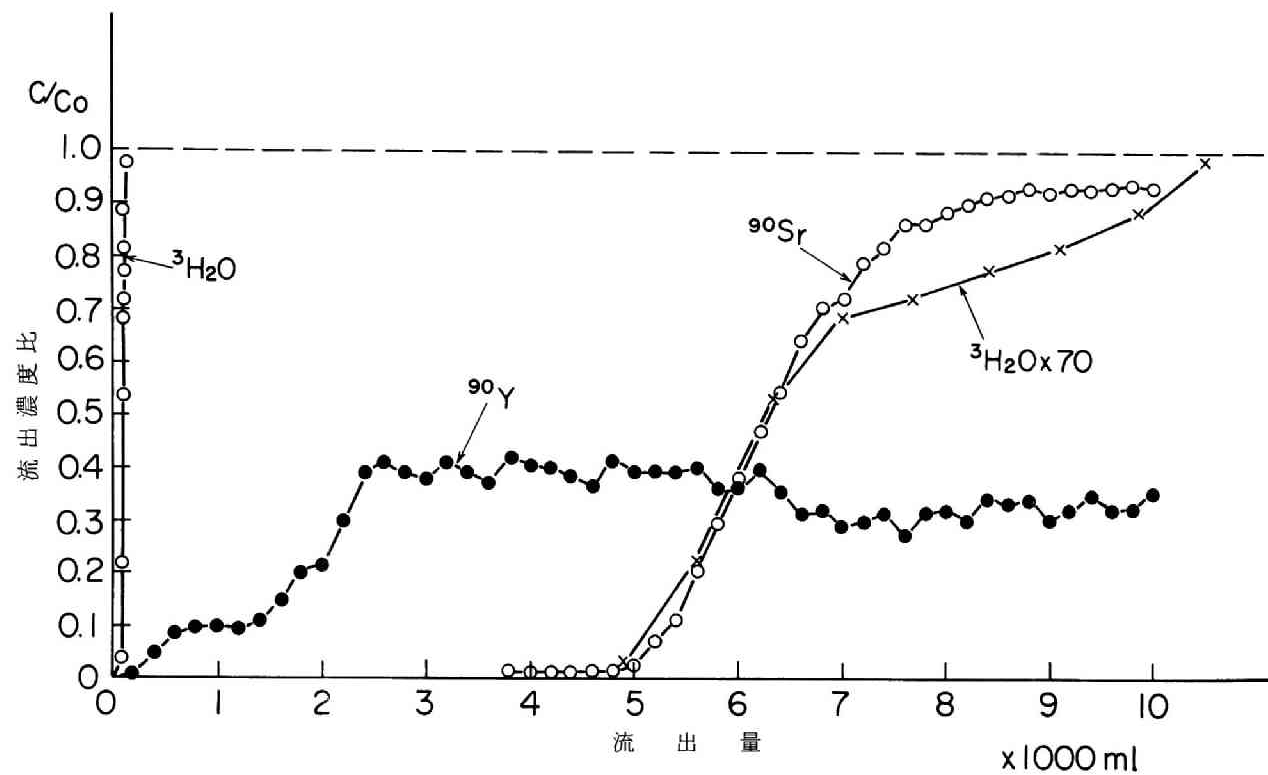


図 I - 4 - 8 硝酸に侵された砂に対する $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$ の流出曲線

$$Kf = 1 + \frac{1-f}{f} \cdot \rho \cdot Kd \quad (I-1-20)$$

ただし、 f : 帯水層を構成する土砂の空隙率

ρ : 帯水層を構成する土砂の密度 (g/ml)

Kd : 放射性核種の分配係数 (ml/g)

で示されるので、(I-1-20)式より Kf 値を計算すると $Kf \div 100$ となった。そこで図 I-4-7 に示された HTO の流出曲線を横へ 100 倍ひき伸して、理論流出曲線として図に併せて示した。理論流出曲線と実測流出曲線は非常に良い一致を見た、したがって、この帯水層は ^{90}Sr が混入した場合に、 ^{90}Sr の移動速度を地下水の移動速度の $1/100$ に遅らせる能力があり、かつこれは井上の示した Kf 値¹⁴⁾ でうまく予測できることがわかった。

^{90}Sr の娘核の ^{90}Y に注目してみると、 ^{90}Y は 3 価の陽イオンであるためガラス管壁とか土砂とかに非常に良く吸着され流出がおこりにくいと考えられる。しかし、図 I-4-7 をみってみると原水濃度の $1 \sim 2$ 割の ^{90}Y が HTO と同じほど速く溶出する現象が認められた。これは液性が中性に近いため ^{90}Y の全量がイオンとして存在するのではなく、その一部分がコロイドのような状態で溶存しているためであると考えられる¹⁰⁾。

図 I-4-8 が硝酸に侵された帯水層における $^{90}Sr - ^{90}Y$ の移動状態を示したものである。前述したように、ピーカ内での分配実験では本実験の目的とするのと違った条件下の結果が得られる恐れがあるので、実測流出曲線から直接遅れ係数 Kf 値を求めた。

図 I-4-8 をみると、 ^{90}Sr の流出曲線は HTO の流出曲線を 70 倍横へ引き伸ばしたものと非常に近い曲線を示したので、図より $Kf \div 70$ と考えた。図 I-4-7 に示されたように、 ^{90}Sr が通常の帯水層を移動する時の Kf 値は 100 だったから、硝酸に完全に侵され、半透明になった試料砂でも、 ^{90}Sr の移動を遅らせることに関してはまだ 7 割程度の能力を有することが明らかになった。

また娘核の ^{90}Y は通常の帯水層の時と同様にラジオコロイドのようなものを作り、3 割程度が地下水と同じ速度で移動することがわかった。

b) ^{137}Cs の移動状態

^{137}Cs は土砂に非常に良く分配され、図 I-4-7、図 I-4-8 のような流出曲線が得られなかったので、カラム上部の土砂を取り出し、取り出した土砂に分配された ^{137}Cs の量を測定した。この結果、通常の帯水層および硝酸に侵された帯水層に対

して分配係数がそれぞれ、 630 ml/g 、 460 ml/g と得られ、遅れ係数 K_f 値はそれぞれ、 $K_f \div 1900$ 、 $K_f \div 1400$ となった。したがって ^{137}Cs の場合も ^{90}Sr の時と同様に硝酸で完全に侵された帯水層でも通常の帯水層が有する移動を遅らせる能力の約7割の能力を有することが推定できた。

なお、本実験で得られた ^{137}Cs の K_f 値はいずれも、実際の帯水層で得られるはずである値より小さい値であると考えられる。すなわちカラム上部の砂に対する ^{137}Cs の分配現象が完全には平衡に達していないと考えられ、したがって実際の分配量はもう少し大きい値になるはずである。その結果として分配係数値および K_f 値がさらに大きくなるはずである。

したがって ^{137}Cs に関してはその移動速度が、硝酸に完全に侵されたKUR砂に対しても、地下水の移動速度の $1/1400$ 以下と予測され、 ^{90}Sr などに比べて、地下水中に混入した場合の環境安全上の危険性は、はるかに少ないといえることがわかった。

第4節 硝酸濃度が放射性核種の土砂への分配におよぼす影響

本章第2節および第3節の実験の結果、再処理廃水のような高濃度の硝酸溶液が帯水層に侵入した場合には、廃水中に含まれる放射性核種は、廃水自体と同じ様な速度で帯水層中を移動し、かつ帯水層を構成する土砂は硝酸によって侵かれ、大量の Ca^{2+} や Mg^{2+} が溶出することがわかった。溶出した大量の Ca^{2+} や Mg^{2+} によって地下水中の Ca^{2+} や Mg^{2+} の濃度が高くなった場合のその地下水中での放射性核種の分配現象については、本編第2章、第3章の研究結果が応用できる。

一方、硝酸溶液が地下帯水層に混入する様子を考えた場合、長期にわたり連続的に硝酸溶液が混入し続けるとは考えられず、図I-4-4などからも明らかなように土砂と化学反応をおこすことによって硝酸濃度が低下し（目安としては砂100gで硝酸0.02mol使用）、かつ前方に進むに従って地下水でうすめられるはずである。

また、本章第1節で前述した通常の放射性廃水で液性が硝酸酸性のものについては、1Nよりも低い濃度の硝酸溶液の影響を知る必要がある。

そこで本節では、種々の硝酸濃度下における放射性核種の地下帯水層での移動状態すなわち硝酸濃度が放射性核種の土砂への分配におよぼす影響を知るため各種の硝酸濃度の模擬廃水を用いてカラム実験を行った。

放射性核種としては、本編第2章、第3章および本章第2節、第3節の研究結果等

から環境安全上問題となるのは ^{90}Sr と考えられるので、 ^{90}Sr を使用すべきであるが、 ^{90}Sr には娘核 ^{90}Y が常に同伴するため、測定が複雑になるので、同位元素の ^{85}Sr を使用した。 ^{85}Sr は carrier free の微量なものをを用いたが、表 I-4-2⁴⁾ でも示したように再処理廃水中の放射性核種の濃度が高いため、carrier を加えて Sr の分配係数の変化も併せて調べた。

試料砂としては KUR 砂（京都大学原子炉実験所構内地下帯水層より採取したもの）を用い、模擬廃水を作成するための試水としては、同じく京都大学原子炉実験所構内地下帯水層より採取した地下水を用いた。

4-1 実験方法

a) carrier free の ^{85}Sr

試水に硝酸溶液を加えて、0.5N, 0.1N, 0.05N, 0.03N, 0.01N, 0.005N, 0.003N, 0.001N, 0.0005N の濃度にしたものにそれぞれ carrier free の ^{85}Sr を約 $10^{-2} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ と HTO を約 $10^{-2} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ とを加えて模擬廃水とした。

図 I-4-1 に示したようなカラムに試料砂 100g づつを空隙率 0.45 で充填し、そこへそれぞれの模擬廃水を約 5 ml/min の流量で通水した。

カラム下部で流出水をはじめの 100 ml は 10 ml づつ、それ以後は 20 ml づつ採取した。はじめの 100 ml については各採取水のうち 2 ml を ^{85}Sr の測定に、残りを蒸留して ^{85}Sr を分離してから HTO の測定に用いた。

^{85}Sr の放射能濃度の測定には、NaI シンチレーションカウンタを、HTO の測定には液体シンチレーションカウンタを用いた。

b) carrier 添加の ^{85}Sr

硝酸濃度 0.003N の模擬廃水にさらに carrier として、硝酸ストロンチウムを適量づつ添加して 120ppm, 90ppm, 60ppm, 30ppm Sr 入りの模擬廃水を作成した。

前述 a) の実験方法と同じようにカラムに試料砂 100g づつを空隙率 0.45 で充填し、各模擬廃水を通水した。各カラムとも約 5 l 通水し、カラムの出入口での ^{85}Sr の放射能濃度が等しくなったことを確認した後、各カラムに純水を通水し、空けき中の模擬廃水を追い出し、カラム上部より試料砂を 10g 程度づつ取り出した。試料砂に 2N 塩酸を加えて ^{85}Sr を溶出させ、放射能濃度を測定した。

^{85}Sr の放射能濃度は NaI シンチレーションカウンタで測定した。

4-2 実験結果および考察

a) carrier free の ^{85}Sr

原水の放射能濃度（一定）を C_0 、流出水の放射能濃度を C として濃度比 C/C_0 を計算してたて軸に、横軸に流出量（一定流量で通水しているので、流出時間と比例している）をとると図 I-4-9、図 I-4-10 が得られた。

模擬廃水のトレーサとして用いた HTO の流出曲線は廃水ごとに得られたが、各実験とも同じ形のコラムを使用したので、ほぼ同じ流出曲線が得られたので硝酸濃度 0.03 N のときのものを代表流出曲線として図に示した。

さて、本実験の場合、 ^{85}Sr が carrier free で非常に微量なので、 ^{85}Sr の砂への分配量と溶液中濃度との比、すなわち分配係数 K_d は、他の主要溶存陽イオン（この場合は主として H^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 等）の溶存条件が不変であれば一定値を示すはずである⁸⁾⁹⁾。

この場合には、

$$K_f = 1 + \frac{1-f}{f} \cdot \rho \cdot K_d \quad (\text{I-1-20})$$

で示される 井上の提案した遅れ係数 K_f 値¹⁴⁾ が良く一致するはずである。

そこで、図 I-4-9、図 I-4-10 について、HTO の流出曲線において同一濃度比を示す時の流出量の比が K_f 値に相当するわけであるから、各模擬廃水について濃度比 0.1、0.2……、0.9 と順に両図から K_f 値を求めた。この結果、濃度比 0.2 から 0.8 の間で得られた各模擬廃水の ^{85}Sr の K_f 値は各流出曲線ごとにほぼ一定値を示した。そこで、本実験結果は (I-1-20) 式で示された K_f 値が良く一致することがわかった。

各模擬廃水ごとの ^{85}Sr の遅れの割り合いを示す K_f 値を、各模擬廃水ごとに濃度比 0.2 から 0.8 までの間で実測した K_f 値の平均値として近似的に求めて表 I-4-3 に示した。

表 I-4-3 ^{85}Sr の分配係数値と H^+ 濃度との関係

H^+ 濃度	0.5N	0.1 N	0.05N	0.03 N	0.01 N	0.005 N	0.003 N	0.001 N	0.0005N
K_f	1.2	1.9	3.1	4.9	14	28	49	95	100
K_d ml/g	0.07	0.29	0.68	1.3	43	9.1	16	31	33

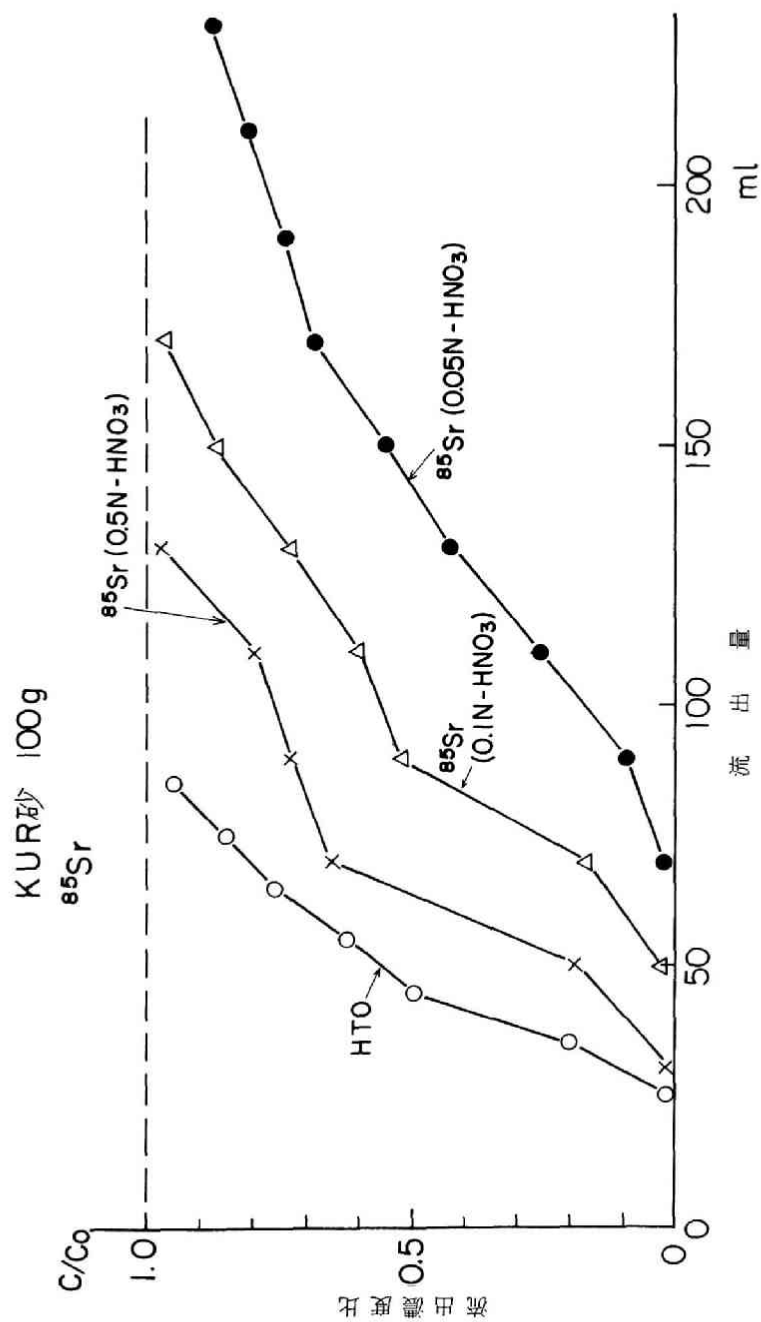


図 I - 4 - 9 硝酸濃度が変化した場合の ^{85}Sr の流出曲線 (1)

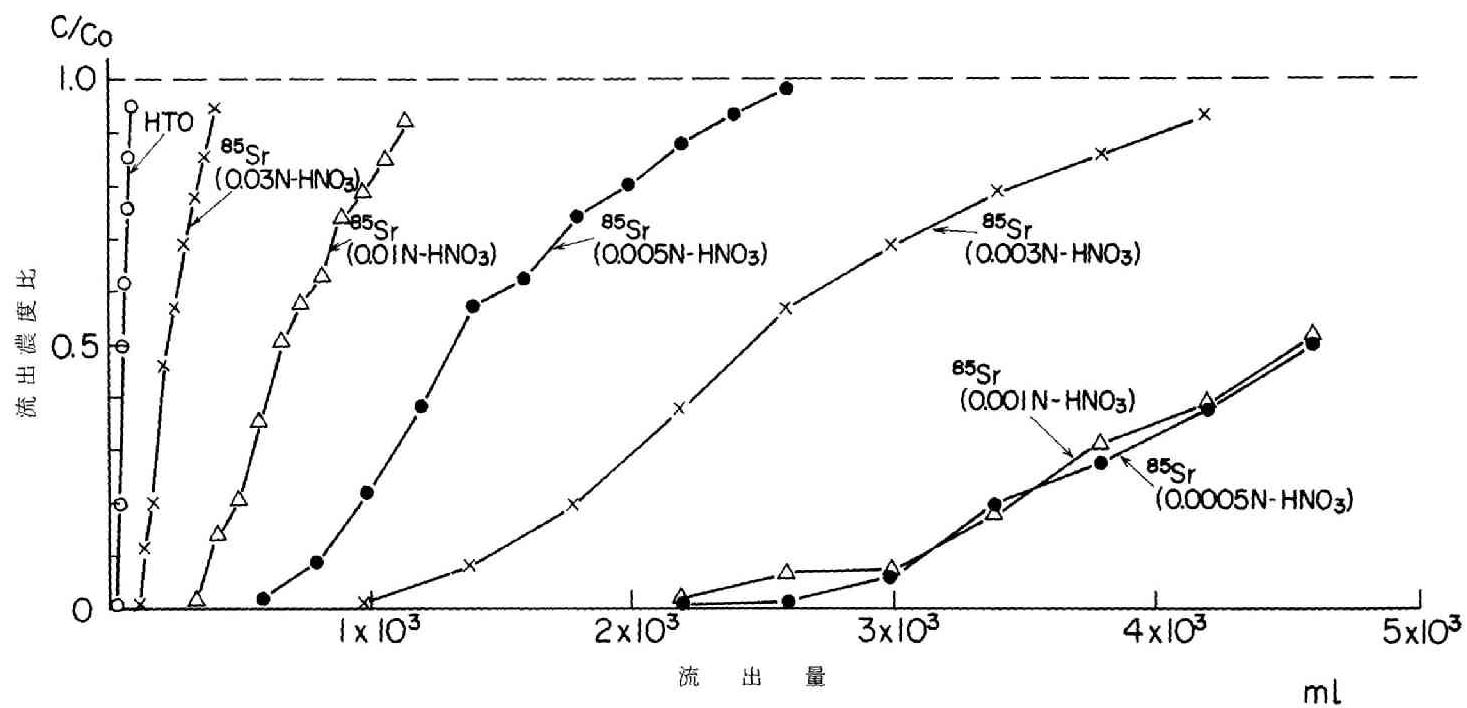


図 4-10 硝酸濃度が変化した場合の ^{85}Sr の流出曲線 (2)

(I-1-20)式において f は空隙率で本実験では 0.45, ρ は砂の密度で 2.47g/ml とわかっているの、Kf 値が定まれば分配係数 Kd が求まる。そこで、各 Kf 値について分配係数 Kd を計算して表 I-4-3 に併せて示した。

表 I-4-3 に示された各 Kd の値をたて軸に、それに対応する模擬廃水の硝酸濃度を横軸にそれぞれ対数目盛で表わすと図 I-4-11 のようになった。なお硝酸濃度 0.5 N の場合の流出曲線は図 I-4-9 でも明らかなように必ずしも HTO の溶出曲線を横へ Kf 倍引き伸ばした形とは言えない。これは 0.5 N 程度の濃度の硝酸溶液では砂層とある程度化学反応を起こしている可能性があるためか、このような流出曲線が得られたもので、表 I-4-3 では平均値として Kf 値を求め、分配係数 Kd を算出したが、図 I-4-11 では採用しなかった。

図 I-4-11 では ^{85}Sr の分配係数値と硝酸濃度との間には両対数紙上で直線関係が読みとれ、本編第 2 章で得られた Ca^{2+} や Mg^{2+} や Na^{+} などの影響を示す実験式 (I-2-3) 式と同じように ^{85}Sr の分配係数は

$$\text{Kd}_{\text{Sr for H}^+} = m_{\text{H}^+} \cdot (C_{\text{H}^+})^{-n_{\text{H}^+}} \quad (\text{I-4-1})$$

ただし、 C_{H^+} : 溶液中の硝酸濃度

$$m_{\text{H}^+}, n_{\text{H}^+} : \text{Kd}_{\text{A for H}^+} \text{を } \text{ml/g}, C_{\text{H}^+} \text{を } 10^{-2} \text{ N で表示すると、それぞれ } 4.3, 1.1$$

という実験式で表わされることがわかった。

また図 I-4-11 において、0.001 N および 0.0005 N の時の分配係数が直線から、大きくはずれたが、これは模擬廃水を作成するのは、京都大学原子炉実験所構内地下帯水層で採取した地下水を試水として用いたためである。すなわち、前述したように、この地下水には Ca^{2+} 12ppm (Ca^{2+} として)をはじめ、 Mg^{2+} や Na^{+} を含んでおり、本章第 3 節のカラム実験の実験結果の時に述べたように、この地下水に微量の Sr^{2+} を添加した場合の Sr^{2+} の分配係数は 33ml/g となる。ところが、図 I-4-11 でも明らかなように、硝酸濃度が約 0.002 N より低くなると、硝酸濃度と分配係数値の影響とを示す直線は $\text{Kd} = 33\text{ml/g}$ を示す横線より上にあがる (分配係数値が 33ml/g より大きくなる) はずである。したがってこの時には、地下水中に主として含まれる Ca^{2+} などの影響が大きくなり、実験により得られた値は、地下水中陽イオンに硝酸溶液の影響を加えた値となり、 33ml/g よりも当然小さい値になる。したがって、

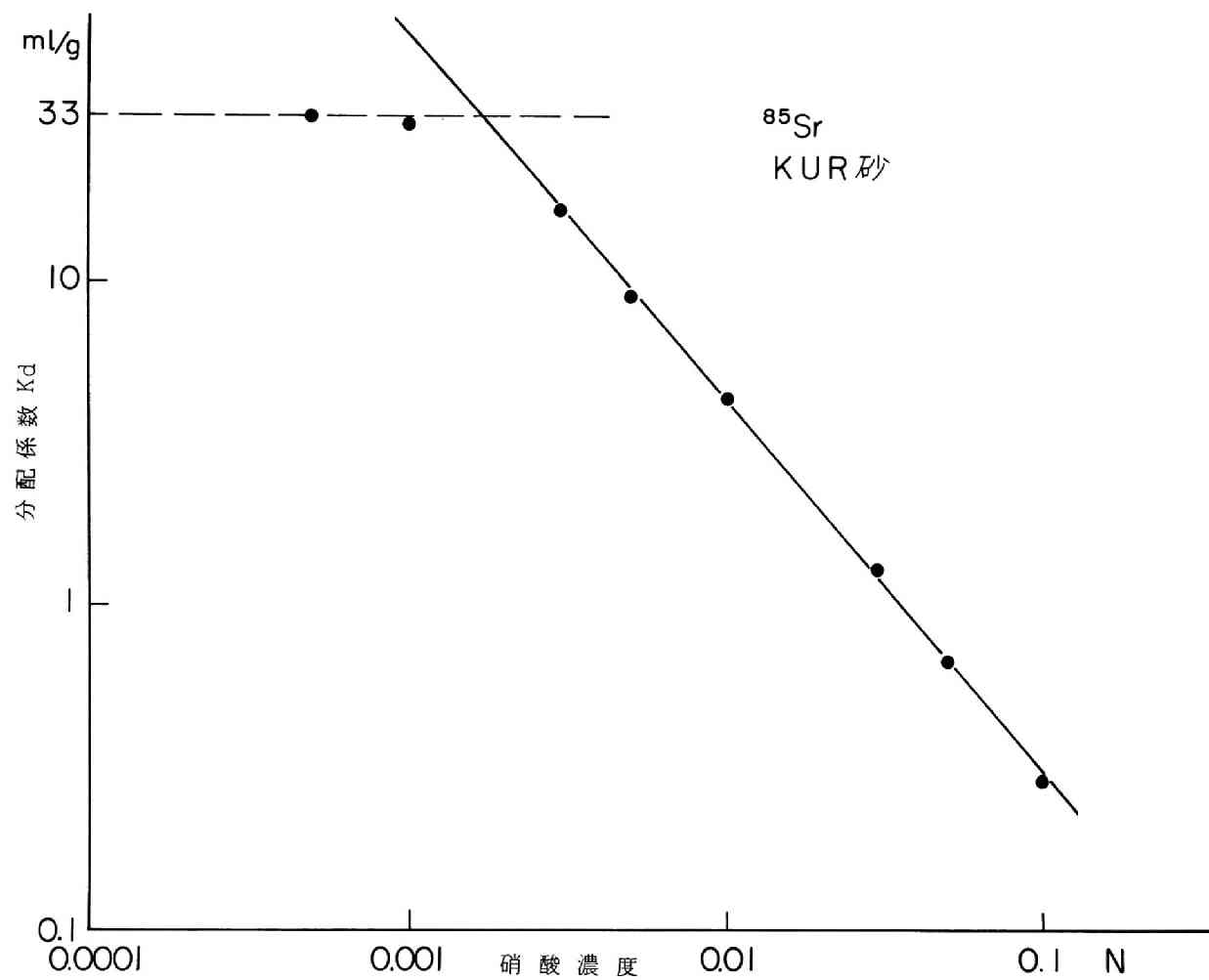


図 I - 4 - 11 ^{85}Sr の分配係数におよぼす硝酸濃度の影響

図 I-4-11 に描かれた実験値は、硝酸濃度が約 0.003 N までのものは主として硝酸溶液の影響を示し、0.001 N および 0.0005 N に対する実験値は、通常の地下水中に主として含まれる Ca^{2+} などの他に同量（硝酸濃度 0.001 N は H^+ 濃度では $1 \times 10^{-3} \text{ meq/ml}$ 、 Ca^{2+} 12ppm は $6 \times 10^{-4} \text{ meq/ml}$ ）もしくはそれ以下の H^+ が加わった時の分配係数への影響を示していることになる。しかもこの時の分配係数の値が 31.33 ml/g であり、硝酸溶液を含まない時の値、 33 ml/g とほとんど同じである、すなわち約 10^{-3} meq/ml 以下の H^+ が加わっても、通常の地下水中の分配係数値にはほとんど影響がないことがわかった。また本編第 2 章、第 3 章において Ca^{2+} や Mg^{2+} などが放射性陽イオンの分配に与える影響を研究した際に、pH 5.5 ~ 6.5（ H^+ 濃度で $3.2 \times 10^{-5} \sim 3.2 \times 10^{-6} \text{ meq/ml}$ ）で実験を行ったが、この時に H^+ 濃度の影響を考慮しなくてもよかったことがたしかめられた。

なお、本実験ではストロンチウムに限定して実験を行ったが、Boetsle および Dejonghe⁴⁾ は再処理廃水処理の立場から ZrP (Zirconyl Phosphate の略) というイオン交換吸着体を用いて図 I-4-12 のように、微量の ^{89}Sr , ^{86}Rb , ^{152}Eu , ^{134}Cs などについて硝酸溶液と分配係数との関係について実験を行っている。これらの分配係数値は、ZrP という交換吸着体が 4.56 meq/g という大きい交換容量を有し、かつ再処理廃水の処理を目的として開発されたため、いずれの放射性核種についても大きな値を示しているが、硝酸濃度との関係は、本実験結果と同じように両対数紙上で直線関係を示している。

b) carrier 添加の ^{85}Sr

模擬廃水中に大量の carrier のストロンチウムを添加した場合は、砂へのストロンチウムの分配量は大きくなり、他の陽イオンと競合し、交換吸着の座を占有し合う。しかも砂の交換吸着の座の総数は、本編第 2 章第 3 節でも示したように交換容量で定まっている⁹⁾。したがって carrier free の場合のようにストロンチウムの分配係数が、液相中のストロンチウムの濃度にかかわらず一定というふうにはならず、井上の提案した K_f 値¹⁴⁾ を用いた流出曲線による解析が適用できない。

そこで実験方法で述べたように、平衡状態に達した後にはカラム上部より砂を取り出し、分配したストロンチウムの量を ^{85}Sr の放射能濃度を測定することにより求めて、この値より分配係数値を計算した。

分配係数値をたて軸に、対応する模擬廃水中のストロンチウム濃度を図に示すと図 I-4-13 のようになった。図 I-4-13 は硝酸濃度が 0.003 N のときのものである

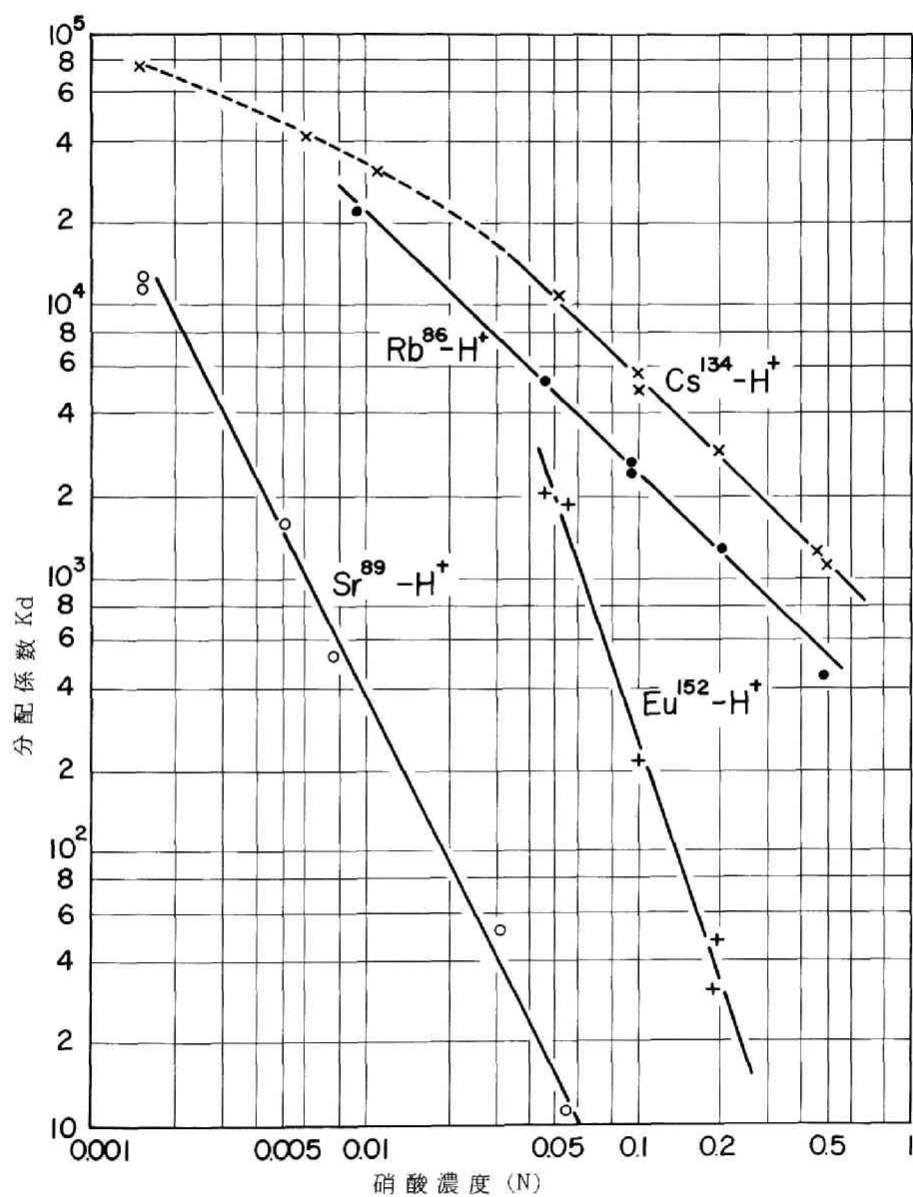


図 I-4-12 ZrP に対する微量イオン交換平衡⁴⁾

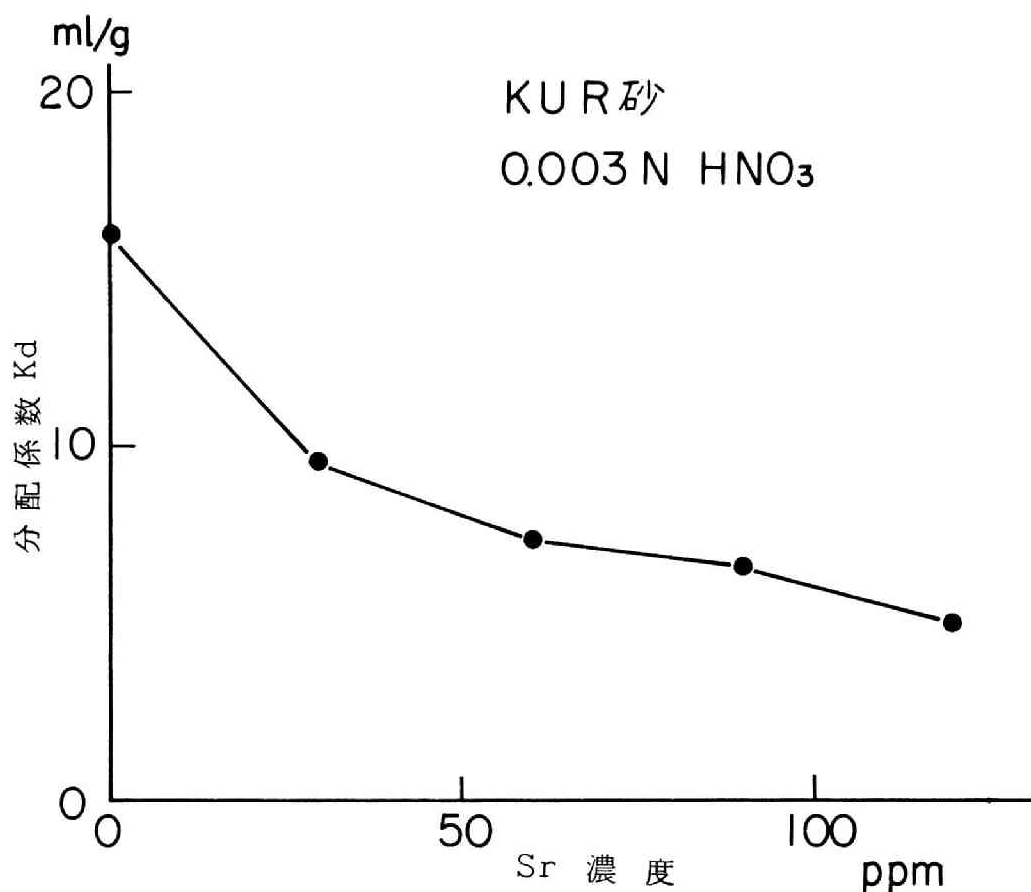


図 I-4-13 Carrier 量が変化した場合の Sr の分配係数

が、図 I-4-11 より明らかにこの時の分配現象は Ca^{2+} や Mg^{2+} でなくて硝酸が支配的である。図より、ストロンチウムの分配係数は carrier の量が増すに従って低下し、carrier 120ppm の時の値はおおよそ carrier free の時の $\frac{1}{3}$ であることがわかった。

分配係数の値が小さくなるということは、それだけ分配の割り合いが低く、したがってそれだけ早く地下帯水層を移動する危険があることを意味している。なお、たとえば図 I-4-14 に示すように、Baetslé および Dejonghe⁴⁾ らが 0.5 N の硝酸溶液を用いて ZrP に対するセシウムの分配係数値の変化を求めたものをみると、carrier 数百 ppm の時と carrier free の時との分配係数値は 3 桁程度も違い carrier の効果は非常に大きい。

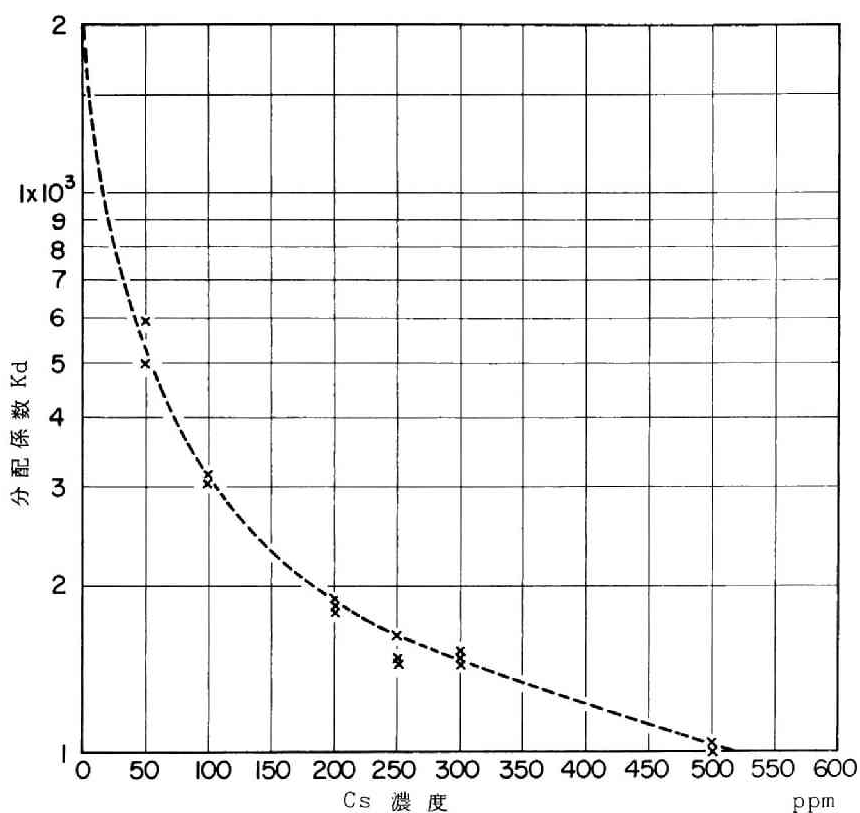


図 I-4-14 ZrP に対する Cs の分配係数⁴⁾

これにくらべると、本実験で行ったストロンチウムの carrier の影響はそれほど大きなものではないかもしれないが、再処理廃水中核種の地中移動を推定する場合には十分に考慮しなければならない。ただ、前述したように再処理廃水のような硝酸溶液が長期にわたり、連続的に地下帯水層に混入するとは考えられず、硝酸溶液の硝酸濃度が低下するにつれ、ストロンチウムも土砂に吸着されたり、地下水で希釈されたりしてその濃度が低下することが充分予想され、carrier の影響も少なくなることが予想できる。

第5節 結 論

本編第2章、第3章においては通常の地下帯水層における放射性陽イオンの分配現象について研究を行ったが、本章では、核燃料再処理廃水のような強酸性廃水が地下帯水層に混入した場合に、廃水中放射性核種がどのような挙動をとるかについて実験的研究を行った。

まず第2節では再処理廃水の模擬廃水として1N硝酸溶液に、環境安全上問題となる放射性核種のうちで、土砂に分配されにくい ^{90}Sr と分配されやすい ^{137}Cs とを別々に添加したものを用いて、試料砂を充填したカラムへの通水実験を行った。1N硝酸溶液に添加した ^{90}Sr と ^{137}Cs はそれぞれcarrier freeのものとcarrier入り（ストロンチウムの場合120ppm、セシウムの場合250ppm）のものとを用いた。カラムへの通水実験から流出曲線を求め、模擬廃水のトレーサとして同時に添加しておいたHTOの流出曲線との比較を行った。この結果、 ^{90}Sr はcarrier freeの場合も、carrier入りの場合も、廃水自体の動きとほとんど同じ動きを示し、試料砂に分配されずに移動することがわかった。また、 ^{137}Cs はcarrier入りの場合は廃水自体とほとんど同じ動きを示し、carrier freeの場合でも廃水の移動速度の1/60程度の速度で移動し、この試料砂で構成された通常の帯水層を微量 ^{137}Cs が移動するときの移動速度が地下水の移動速度の1/1200であるのに比べると非常に早く移動することがわかった。したがって、再処理廃水のように強硝酸性でかつ放射能濃度の高い廃水が地下帯水層に漏洩した場合、帯水層を構成する土砂と硝酸が反応して、硝酸濃度が低下するまでは土砂の有するイオン交換能は期待できないことがわかった。

第3節では、まず試料砂を充填したカラムに1N硝酸溶液を通水し、カラム下部から溶出する Ca^{2+} や Mg^{2+} を測定して、硝酸溶液が土砂に与える影響を調べた。この結果、砂から Ca^{2+} および Mg^{2+} を溶出させるためには、はじめは硝酸溶液の通水量が支配的であるが、すぐに接触時間が支配的となることがわかった。そして砂から Ca^{2+} および Mg^{2+} が溶出しなくなるまでには約半年近くかかり、肉眼で観察しても試料砂は半透明に見えた。約半年後に試料砂から溶出した Ca^{2+} および Mg^{2+} の全量は、試料砂の交換容量の50倍にもなっており、試料砂に含まれる長石、石灰石等が硝酸溶液と化学反応をしたものと思われた。

また、きわめて大まかではあるが1N程度の硝酸溶液では砂100gにつき0.02mol程度の硝酸が化学反応のために使用されるという目安を得た。なおこの結果から徐々に H^{+} 濃度が低下し、硝酸溶液の影響が小さくなることが予測できる。

つぎに、硝酸溶液で完全に侵された試料砂がまだ放射性核種を分配させ、その移動を遅らせる能力を有するかどうかを研究した。カラムに試料砂をつめ完全に硝酸溶液で侵した後に、 ^{90}Sr または ^{137}Cs を含む地下水を通水し、カラム下部より流出する流出水の放射能濃度を測定して流出曲線を求めた。硝酸溶液で侵されていない試料砂を充填したカラムに ^{90}Sr または ^{137}Cs を含む地下水を通水し、流出曲線を求め、両流出曲線を比較して、硝酸溶液で侵された試料砂の分配能力を調べた。この結果 ^{90}Sr および ^{137}Cs とも、硝酸溶液で侵された砂層を移動する速度は通常の砂層を移動する速度の7割程度すなわち硝酸溶液で完全に侵された試料砂でも、まだ7割程度の分配能力を有することを知った。

第4節では、種々の硝酸濃度下における放射性核種の地下帯水層での移動状態すなわち硝酸濃度が放射性核種の土砂への分配におよぼす影響を知るため ^{85}Sr を混入した各種の模擬廃水を用いてカラム実験を行った。この結果、種々の硝酸濃度に対応する ^{85}Sr の流出曲線が得られたので、井上の提案した遅れ係数 K_f 値¹⁴⁾ を用いて、分配係数を逆算した。得られた分配係数値と硝酸濃度との関係から実験式として

$$K_{d_{\text{Sr for H}^+}} = m_{\text{H}^+} \cdot (C_{\text{H}^+})^{-n_{\text{H}^+}} \quad (\text{I-4-1})$$

が得られ、本編第2章で得られた Ca^{2+} や Mg^{2+} によって支配される時の分配係数の変化を示す実験式と同じ型式で示されることを知った。また同時に 10^{-3} meq/ml (pH3) 程度以下の H^+ が加わっても、通常の地下水の分配係数値にはほとんど影響がないこともわかった。(I-4-1)式が得られた実験は carrier free の ^{85}Sr について得られたものであるが、carrier の影響を知るため 120ppm, 90ppm, 60ppm, 30ppm と carrier ストロンチウムを添加した模擬廃水 (0.003 N 硝酸溶液) を用いて分配係数値の変化を求めた。この結果 carrier 120ppm の時の値は carrier free の時のおよそ $\frac{1}{3}$ であることがわかった。しかし、硝酸および carrier のストロンチウムが土砂と反応したり、吸着されたり、地下水に希釈されたりしてその濃度が低下することが予想できるので、ストロンチウムの carrier の効果は小さくなることが予想できる。

これらの結果から土砂のもつ分配能力に期待することは放射性廃棄物の保管の安全性評価において、非常に大きい意味を持ち、また土砂と酸との反応も中和作用を主と

したものが有効に働くので、土砂の分配能力は安全性確保のために十分、期待しうる
ことがわかった。

第 I 編第 4 章の参考文献

- 1) IAEA; "Disposal of Radioactive Wastes I", Proceedings of the Scientific Conference on the Disposal of Radioactive Wastes of Monaco, 16-21 November 1959, 18 (1960).
- 2) 日本原子力産業会議編; "核分裂生成物等総合対策懇談会報告書", II - 3 (1973).
- 3) 岩井重久、井上頼輝、西牧研壮、"再処理廃液中核種の地下移動"、日本原子力学会誌、10, 435 (1968).
- 4) IAEA; "Treatment and Storage of High-Level Radioactive Wastes" Proceedings of the Symposium on Treatment and Storage of High-Level Radioactive Wastes in Vienna, 8-12 October 1962, 555 (1963).
- 5) Amphlett, C.B.; "Treatment and Disposal of Radioactive Wastes", Pergamon Press, 7 (1961).
- 6) 筒井天尊、下浦一邦; "京都大学原子炉実験所放射性廃棄物処理施設の設計", KURRI-TR-80 (1970).
- 7) 筒井天尊、下浦一邦; "京都大学原子炉実験所放射性廃棄物処理装置の計装", KURRI-TR-104 (1972).
- 8) 筒井天尊、西牧研壮; 保健物理、10, 79 (1975).
- 9) 筒井天尊、西牧研壮; 保健物理、10, 203 (1975).
- 10) 筒井天尊、西牧研壮; 土木学会論文報告集、第 200 号、25 (1972).
- 11) 日本放射性同位元素協会編; "アイソトープ便覧"、丸善、424 (1962).
- 12) 日本水道協会編; "上水試験方法", 136 (1960).
- 13) 筒井天尊、西牧研壮、赤木文行; "再処理廃水中核種の地中移動について", 昭和 44 年度土木学会関西支部年次学術講演会講演概要、II - 64 (1969).
- 14) Inoue, Y and W.J.Kaufman; Health Phys., 9, 705 (1963).

- 15) Halaszovich, St., M. Laser, E. Merz and D. Thiele; "FIPS-A Process for the Solidification of Fission Product Solutions Using a Drum Drier", International Symposium on the Management of Radioactive Wastes from the Nuclear Fuel Cycle, IAEA, **SM-207/19** (1976).
- 16) Guber, W. et al; "Lab Scale and Pilot Plant Experiments on the Solidification of High Level Wastes at the Karlsruhe Nuclear Research Center", International Symposium on the Management of Radioactive Wastes from the Nuclear Fuel Cycle, IAEA, **SM-207/79** (1976).
- 17) Bocola, W.; "Hot-cell Experiments of the Pot-Vitrification of Fully Radioactive Fuel Reprocessing Wastes", International Symposium on the Management of Radioactive Wastes from the Nuclear Fuel Cycle, IAEA, **SM-207/85** (1976).

第5章 放射性核種の地中移動に関する予測におよぼす分配係数値の変化の影響の試算

第1節 はしがき

本編第2, 第3, 第4章において地下水中の非放射性陽イオンおよび硝酸溶液が、放射性核種の土砂への分配におよぼす影響について研究を進めたが、本章では放射性核種の分配が放射性核種の地中移動を予測する上でどのような意味を持つかを検討した。

まず、本編第1章で詳しく述べた井上の理論¹⁾²⁾にもとづいて、放射性核種がある距離を移動するのに要する時間を種々の仮定のもとに試算し、これをもとにある距離を移動した時の放射性核種の濃度減少比(自己崩壊による)と分配係数との関係を示した。この時対象放射性核種として⁹⁰Srと⁶⁰Coを取り上げた³⁾⁴⁾。

ここで得られた結果にもとづき放射性核種の分配係数に大きな影響を与える地下水中の非放射性陽イオンの水中濃度と、放射性核種がある距離を移動した時の濃度減少比との関係を求めることにした。この時の対象非放射性陽イオンは水中で最も多量をしめる Ca^{2+} を、放射性核種は物理的、生物学的半減期の長い⁹⁰Srを取り上げることにした。

第2節 試算

2-1 放射性核種の地中移動時の濃度変化と分配係数との関係

本編第1章ですでに述べたように、放射性核種の地中移動を予測するには井上の提案した遅れ係数 K_f を用いる方法が優れている¹⁾²⁾。すなわち、

$$K_f = 1 + \frac{1-f}{f} \rho \cdot K_d \quad (\text{I-1-20})$$

ただし、 f : 地下帯水層の空隙率

ρ : 地下帯水層を構成する土砂の密度

K_d : 分配係数

で示される遅れ係数 K_f を地下水流速に乗ずれば、放射性核種の地中移動速度が求まる手法であり本章においてもこの理論にもとづき議論を進める。

放射性核種の移動時の濃度変化を試算するためにつぎの条件を仮定する。

- (1) 地下帯水層の空隙率および構成する土砂の密度はそれぞれ 0.45, 2.47 g/cm³とする。
- (2) 地下水流速は一般に数 cm/day であるが、大きく見積り、10 cm/day とする。
- (3) 放射性核種の地下水中濃度は移動時に自己崩壊によってのみ減少し、拡散、希釈等の効果は考えない。
- (4) 放射性核種の移動距離を 100 m とする。

これらの仮定のうち、(1)については砂の空隙率、密度は一般に 0.35~0.45, 2.0 g/cm³~3.0 g/cm³であるが、一例として KUR 砂の値を採用した。

以上の仮定のもとに放射性核種が移動し始めた時の地下水中濃度を C_0 、100 m 移動後の濃度を C として、 C/C_0 と分配係数 K_d との関係を求める。

地下水が 100 m 移動するのに $100 \text{ m} / 0.1 \text{ m/day} = \frac{1000}{365}$ 年要するから遅れ係数 K_f の放射性核種が移動するのには $\frac{1000}{365} \cdot K_f$ 年を要する。

したがって放射性核種が 100 m 移動した時の濃度比は

$$C/C_0 = e^{-\lambda \cdot \frac{1000}{365} K_f} \quad (\text{I-5-1})$$

ただし、 λ : 放射性核種の崩壊定数 (1/年)

となる。

K_f は (I-1-20) 式より K_d の関数として表わされるので、いま放射性核種を ^{90}Sr とすると、

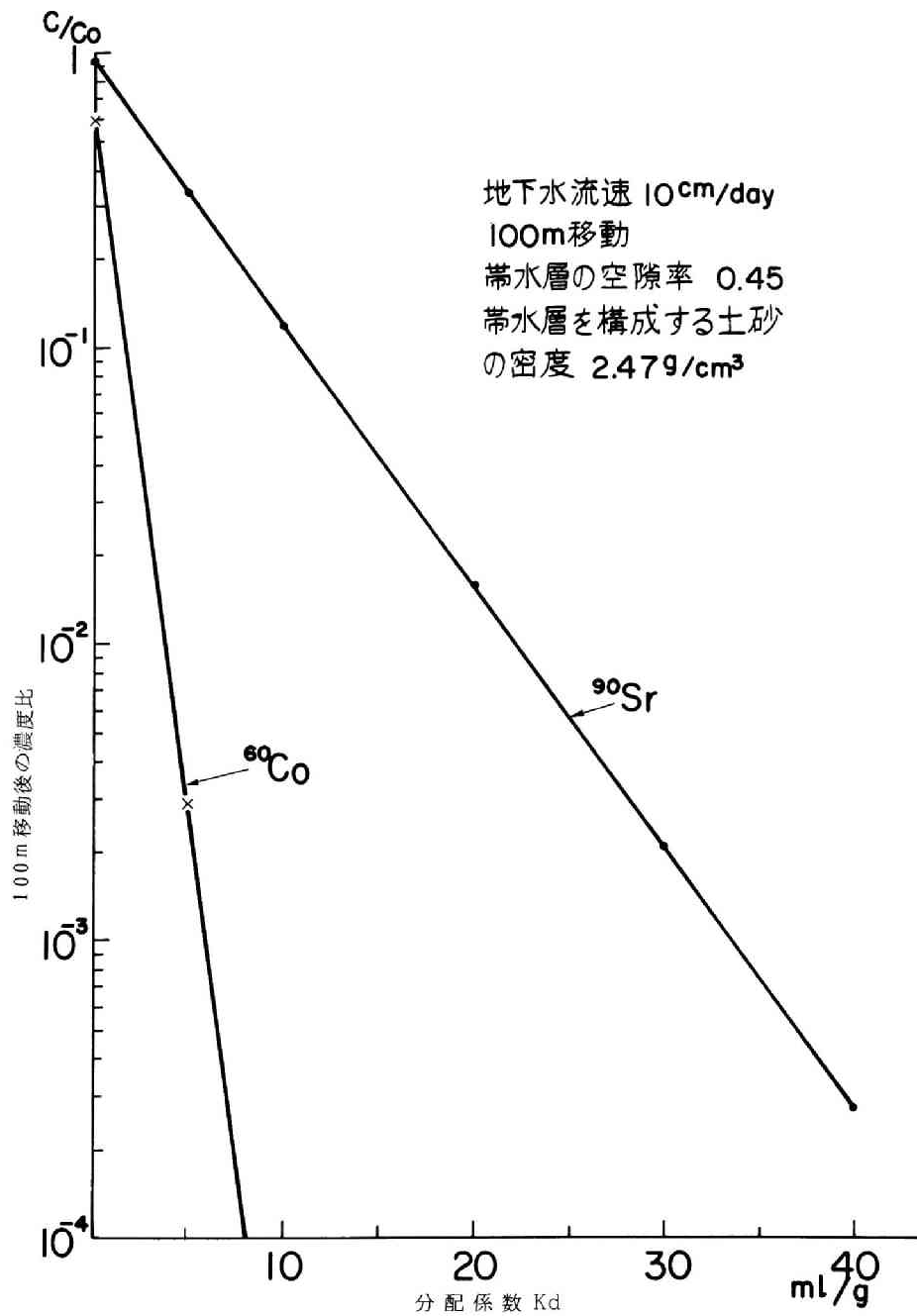
$$C/C_0 = e^{-0.68(1+3.0 K_d)} \quad (\text{I-5-2})$$

となり、放射性核種を ^{60}Co とすると、

$$C/C_0 = e^{-0.37(1+3.0 K_d)} \quad (\text{I-5-3})$$

となる。

(I-5-2), (I-5-3) 式をグラフに描くと、図 I-5-1 のようになる。図 I-5-1 は横軸に分配係数値を普通目盛りで、たて軸には濃度比 C/C_0 を対数目盛り



図I-5-1 ^{90}Sr および ^{60}Co の地中移動時の濃度変化と分配係数の関係

で表わしたものである。

図によれば分配係数値がわずかに変化しても濃度比 C/Co は大きく変化することがわかる。とくに ^{60}Co の場合には ^{90}Sr の場合よりもはるかに濃度比変化が大きい、これは ^{60}Co と ^{90}Sr との崩壊定数の差によるものである。したがって ^{60}Co の場合には分配係数の値がわずかに変化しても 100m 移動後の濃度比 C/Co は非常に大きく変化することがわかった。ただ、安全評価の面からみれば、 ^{60}Co の濃度比自体が同じ分配係数値に対応する ^{90}Sr の濃度比よりもはるかに小さいため、 ^{60}Co は ^{90}Sr にくらべて安全評価上は安全な核種といえる。

一方、 ^{90}Sr は前述の ^{60}Co よりも同じ分配係数値の時の濃度比の値が大きいため、例えば 100m 地中を移動した後に地表または海水中等に流出した場合の環境への影響を計算する時には重要な核種である。 ^{90}Sr の濃度比は ^{60}Co の濃度比ほど大きく変化しないが、それでも分配係数値が約 $10ml/g$ 増加するだけで、濃度比は約 1 桁減少することがわかる。したがって ^{90}Sr の地中での移動を予測する場合には分配係数値は非常に大きな意味を持っており、分配係数値の決定にあたっては、少なくとも大きく見積らないようにする必要がある。

このように重要な意味を持つ、分配係数は本編第 2，第 3，第 4 章で述べたように地下水中の非放射性陽イオンによって支配されるので、次項で非放射性陽イオンの濃度と濃度比 C/Co との関係について検討する。

2-2 ^{90}Sr の地中移動時の濃度変化と地下水中 Ca^{2+} 濃度との関係

前項 2-1 の結果および、本編第 2，第 3，第 4 章の結果から本編では放射性核種として ^{90}Sr を、地下水中非放射性陽イオンとしては Ca^{2+} を取り上げた。

地下帯水層を構成する土砂を KUR 砂（京都大学原子炉実験所構内地下帯水層より採取した砂で、特性については本編第 2 章で述べた）として前項 2-1 で述べたのと同じ仮定で ^{90}Sr が 100m 移動した時の濃度比 C/Co について考える。この時の ^{90}Sr の濃度比 C/Co はすでに述べたように（I-5-2）式で示されるが、いま地下水中の非放射性陽イオンを Ca^{2+} のみにすると、本編第 2 章で述べたように ^{90}Sr の分配係数は Ca^{2+} 濃度の関数として示される。この関係を図に示すと図 I-5-2 のようになる。図 I-5-2 は横軸は地下水中 Ca^{2+} 濃度を、たて軸に 100m 移動後の ^{90}Sr の濃度比をそれぞれ対数目盛りで示したものである。図によれば、 ^{90}Sr の濃度比の値は Ca^{2+} 濃度がわずかに変化しても大きく変動し、しかも Ca^{2+} 濃度の値が低い所ほど濃

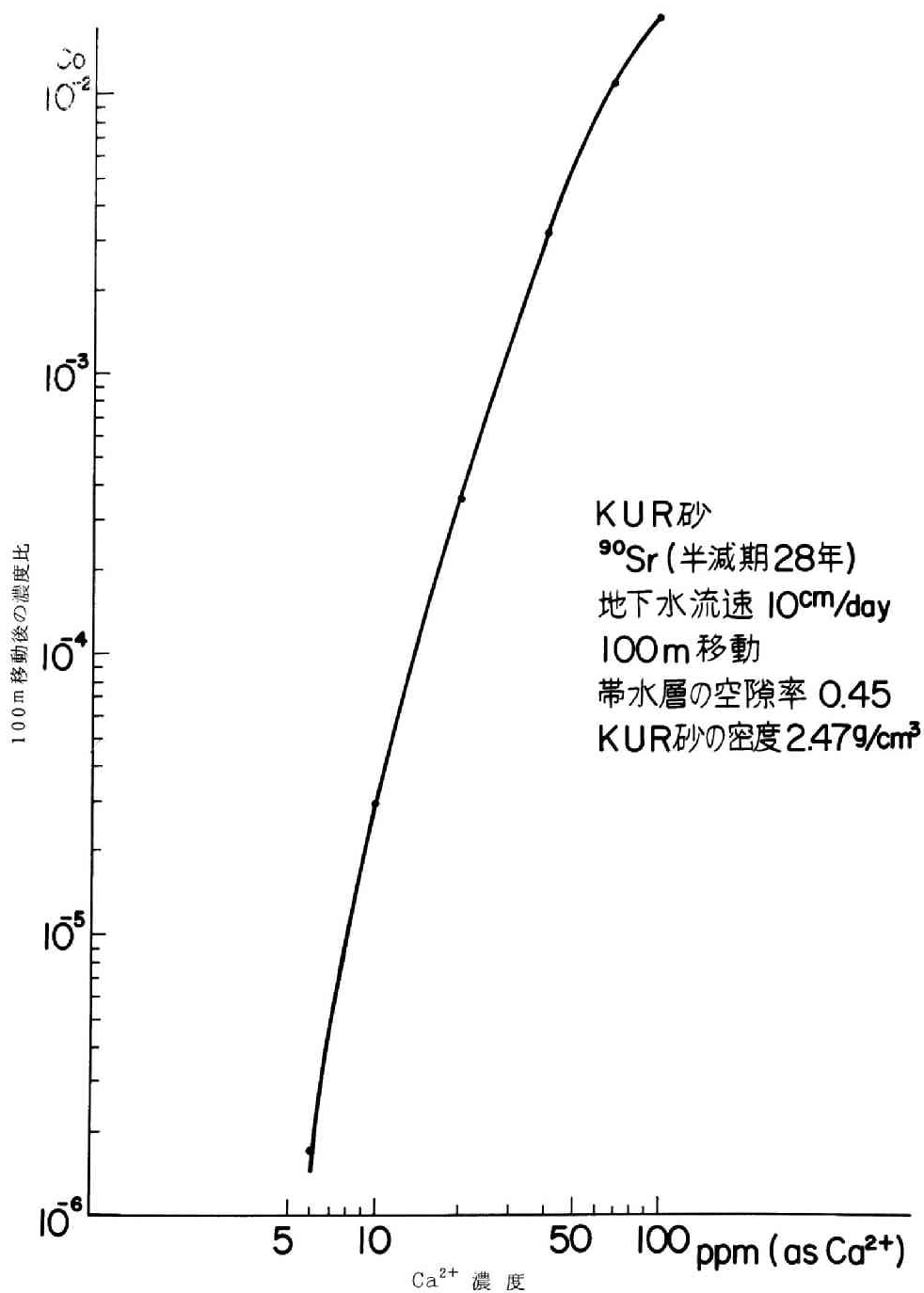


図 I-5-2 ⁹⁰Sr の地中移動時の濃度変化と地下水中 Ca²⁺ 濃度との関係

度比が大きく変動することがわかる。本編第3章で述べたように通常の地下水では Mg^{2+} などの地下水に含まれる Ca^{2+} 以外の陽イオンは Ca^{2+} に置き換えて影響評価をすることができ、しかも、本編第2章表 I-2-10 に示したように、通常の地下水では総硬度でたかだか 100ppm すなわち、硬度の要因がすべて Ca^{2+} としても Ca^{2+} 濃度がたかだか 40ppm であるので、 Ca^{2+} 濃度が ^{90}Sr の地中移動後の濃度比の試算に与える影響はきわめて大きいことがわかる。一般に、放射性廃棄物陸地保管予定地において放射性核種の地中移動の予測の調査をする場合には、第II編第2章で後述するように、予定地においては地下帯水層を構成する土砂のみを採取し、地下帯水層中の地下水を採取せず、実験室において水道水などを代用し、放射性核種の分配係数を測定し分配係数値としたり、適当に分配係数値を仮定したりすることが多いが、これらの場合には、わずかの Ca^{2+} 濃度の違いで分配係数が大きく変化することに留意し、少なくとも安全側に分配係数値を見積らなければならないことがわかった。なお、模擬地下水を用いて、分配係数を決定する方法については第II編第2章で詳しく述べる。

第3節 結 論

本章では、本編第2、第3、第4章で行った分配に関する研究が、放射性核種の地中移動を試算する上でどのような意味を持つかについて簡単に検討した。

まず、井上の理論¹⁾²⁾にもとづいて、 ^{60}Co および ^{90}Sr が空隙率 0.45，土砂密度 2.47 g/cm³、地下水流速 0.1 m/day の地下帯水層を拡散希釈されずに 100m 移動した時の濃度比 C/Co を分配係数の関数として示し、図 I-5-1 に描いた。この結果、両放射性核種の濃度比は分配係数値のわずかな変化で大きく変動し、変動の小さい ^{90}Sr の場合でも分配係数値が約 10 ml/g，増加するだけで濃度比は約 1 桁も減少することがわかった。

また、分配係数値を支配する Ca^{2+} 濃度と ^{90}Sr の 100m 移動後の濃度比との関係の本編第2章の研究結果から求め、図 I-5-2 に示した。この結果、 ^{90}Sr の濃度比の値は Ca^{2+} 濃度がわずかに変化しても大きく変動し、しかも Ca^{2+} 濃度の値が低い所ほど濃度比が大きく変動することがわかった。しかも本試算においては移動距離を 100m と仮定したが、この距離が長くなると濃度比の変動はさらに大きくなる。また空隙率は小さいほど、密度は大きいほど濃度比の変動は大きくなる。

したがって、放射性核種の地中移動を試算する上で、放射性核種の分配を研究することは大きな意味を持っており、かつ試算結果を用いて環境への安全評価を行う時に

は、少なくとも評価の結果が安全側に得られるように分配係数を決定しなければならないことがわかった。

第 I 編 第 5 章の参考文献

- 1) Inoue, Y. and W. J. Kaufman; Health Phys., **9**, 705 (1963).
- 2) 井上頼輝; “放射性廃棄物の地中処分に關する基礎的研究”, 京都大学学位論文, 32 (1970).
- 3) 筒井天尊、西牧研壯; 保健物理, **10**, 79 (1975).
- 4) 原子力安全協会編; “固体廃棄物処理処分委員会中間報告書”, 原安協報告 - 15 (1969).

第Ⅱ編 放射性廃棄物の陸地保管に関する二、三の工学的研究

第1章 概 説

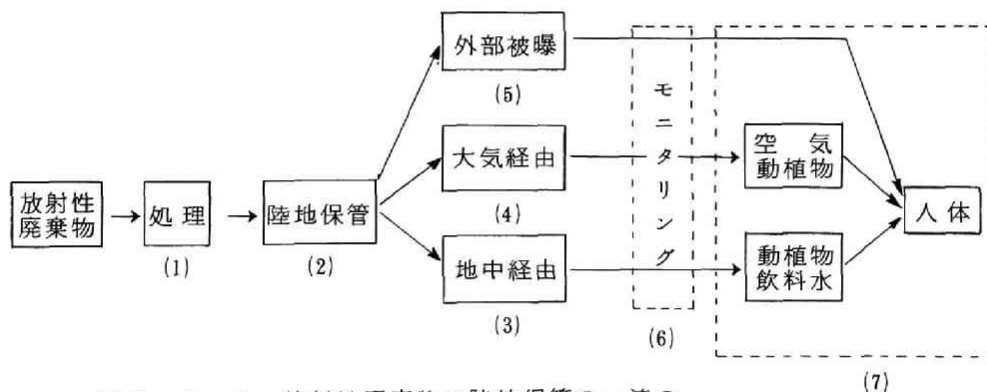
第1節 はしがき

本編においては、放射性廃棄物の陸地保管および最終貯蔵（Terminal Storage）に関する二、三の工学的研究として某原子力施設構内における放射性核種の地中移動に関する調査研究と、陸地保管を評価するための一つの基礎となる放射性廃棄物のセメント固化に関する研究とを行った。

そこで本章において、放射性廃棄物の陸地保管に関する研究の現状を述べ、これをもとに本編の研究の目的と意義について述べた。

第2節 放射性廃棄物の陸地保管の基礎となる工学的研究の現状

放射性廃棄物の陸地保管を行うにあたっては、種々の工学的問題が生じる。すなわち、放射性廃棄物の陸地管理の一連の流れを図に示すと図Ⅱ－１－１のようになり、図中の(1)～(7)の部分にいわゆる工学的問題点が多くあると考えられる。そこで図中の(1)～(7)についての研究の現状を順に述べる。



図Ⅱ－１－１ 放射性廃棄物の陸地保管の一連の流れ

(1) 処理に関する研究の現状

放射性廃棄物は通常液体廃棄物と固体廃棄物に分類される。液体廃棄物は、核燃料再処理廃水¹⁾などのように放射性物質濃度の高いものはそのまま保管（最終的にはガ

ラス化等の固化化を行う^{47) 48) 49)}が、一般に中放射性（京都大学原子炉実験所においては $1 \sim 10^{-5} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ 程度のものを云う²⁾）、弱放射性（同じく $10^{-5} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ 程度以下のものを云う²⁾）、また IAEA および日本原子力研究所の場合の区分法を表Ⅱ－１－１に示す⁵⁰⁾）と呼ばれる放射性物質濃度のあまり高くない放射性廃水は、廃水の量、化学的性状、放射性物質濃度などに応じて、蒸発濃縮処理、イオン交換処理、凝集沈殿処理²⁾等で処理され、この結果液体廃棄物中の放射性核種は、蒸発濃縮液、イオン交換剤、凝集沈殿スラッジ等に移行するわけである。

表Ⅱ－１－１ 放射性廃水の区分・IAEA 提案と日本原子力研究所の例⁵⁰⁾

放射性物質濃度 〔 $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ 〕	<div><div><div>10^{-7}</div><div>10^{-5}</div><div>10^{-3}</div><div>10^{-1}</div><div>10</div><div>10^3</div><div>10^5</div><div>10^7</div></div><div><div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div><div></div></div></div></div>									
---	---	--	--	--	--	--	--	--	--	--

したがって陸地保管の対象となる廃棄物は、元来固体廃棄物として発生する原子炉 1 次冷却水浄化系イオン交換樹脂、フィルタースラッジ等や、実験その他で生じるガラス、金属類の不燃性固体廃棄物、ペーパータオル、ウェス等の可燃性固体廃棄物などと、前述の廃水処理で生じる蒸発濃縮液、使用済イオン交換剤、凝集沈殿スラッジなどが主なものである。これ以外にも、炉内構造物等の特殊な廃棄物や、前述した核燃料再処理廃水等の高放射性でしかも非放射性成分濃度の高い放射性廃水の固化体などがあるが、これらに関してはまだ確立された処理処分法があるとはいえないのが現状である。

これらの廃棄物を陸地保管するためには、まず減容できるものはできるだけ減容している。すなわち、低レベル可燃性固体廃棄物等は焼却処理³⁾により灰化し、ガラス金属等の不燃性固体廃棄物は圧縮し、減容した後固化するのが普通である。

つぎに、これらの放射性廃棄物は、陸地保管中に飛散したり、廃棄物中の放射性核種が雨水等によって浸出したりするのを出来るだけ防止するため固化処理が行われるのが普通である。放射性廃棄物の固化法は、現在のところセメント固化とアスファルト固化とが実用的な方法であるといわれており⁴⁾、これ以外に特殊なものとしてガラ

ス固化、プラスチック固化⁵⁾等がある。特にわが国においてはセメント固化体の圧縮強度に関する研究⁶⁾⁷⁾⁸⁾⁹⁾、平常水圧下の固化体からの放射性核種の浸出に関する研究⁶⁾¹⁰⁾¹¹⁾、高水圧下における放射性核種の浸出に関する研究¹²⁾¹³⁾などが中心に行われてきた。またアスファルト固化¹⁴⁾はベルギーのモル研究所で考案され、現在もヨーロッパを中心に実用化と並行して中レベル、高レベル廃液に対する適用に関する研究が行われている⁴⁾。アスファルト固化体はセメント固化体に比べて放射性核種の浸出率は非常に低く優れているが、固化体の圧縮強度はほとんどなく、夏期にはやわらかくなったり、さらに火災の危険性が考えられるのが欠点である。しかし、いずれにしても、これらの固化法は陸地保管のためだけに開発されたものでなく、セメント固化などは特に海洋処分を主眼に研究が進められているのが現状である⁶⁾⁷⁾⁸⁾⁹⁾¹⁰⁾¹¹⁾¹²⁾¹³⁾。すなわち、経済性を抜きにして考えた場合、海洋投棄の場合には海洋の大きさと水圧を考えて、安全性評価を単純化するために海底への着底までの間は形状が保全されることを目的として約 600kg/cm²の高水圧に耐える圧縮強度の大きい固化体を作成し、固化することによって廃棄物の容積が増大する（固化体の中で廃棄物の占める割合が小さくなる）ことは無視できるのに対して、陸地保管の場合には、特に我国のように国土の狭いところでは保管場所の大きさに限度があるため、固化することによって廃棄物の容積が増大するのを可能な限り防止する必要がある、しかも、この場合には固化体の圧縮強度は海洋投棄の時ほど大きくなくてもよく、せいぜい数十kg/cm²程度で充分¹⁵⁾⁵²⁾である。しかるに、固化することによって廃棄物の容積が増大するという観点から固化法を検討した研究はほとんどない¹⁶⁾のが現状である。

なお、放射性廃棄物の固化体を運搬する際には、IAEAが輸送規則でB型、A型等強固な輸送物のほかにLLS、LSAとして簡易な方法で取り扱える放射性物質¹⁷⁾と、許容できる固化体からの放射性物質の浸出量¹⁸⁾などを定めているので、固化体作成時にはこれらの点も考慮しなければならない。

(2) 陸地保管法に関する現状

放射性廃棄物の陸地保管法は大別すると素掘りの廃棄溝へ廃棄物を投入し埋めもどす方法と人工的に保管施設を建設してその中で保管する方法に分けることができる。

前者の特徴は、土壌の持つイオン交換能を積極的に利用しようとする点である。この方法は欧米で盛んに行われており¹⁹⁾²⁰⁾²¹⁾、特に米国のLos Alamos²⁰⁾の廃棄溝は

その容積が 40,000 m³にも達する。また、廃棄溝へ投入する放射性廃棄物は焼却したり固化したりせず、そのまま投入し、土で埋めもどすので安価でかつ大量に処分できる利点がある。しかし、この方法は、廃棄物中の放射性核種が、雨水などで、容易に地下水に移行するため、国土の広大な米国などでは非常に有利な方法であるが、我国のように国土の狭小な国では危険が伴う恐れがあるし、現行法では認められていないのが現状である。

後者は前者のように積極的に土の持つイオン交換能を利用しようとするのではなく、人工的な保管施設を設けその中で、放射性廃棄物を保管し、放射性核種の浸出を出来るだけ防止し、万一地中に混入した場合には、土の持つイオン交換能を後備的な安全保持システムとして期待しようとするもので、我国では、国土の広さ、国民感情等の我国の特殊性を考えた時には適した方法であると考えられる。現在我国では日本原子力研究所東海研究所においてこの方法がとられており、地下に鉄筋コンクリート製の保管施設を設け、この中へドラムづめにした放射性廃棄物を保管している²²⁾。なおこの場合には土の持つしゃへい効果も利用している。我国においては東海研究所以外は、各原子力発電所等では、海洋処分を含みとして一時的に地上に保管施設を設け保管中であるのが現状である。また、欧米などでもいわゆる中レベル程度の廃棄物²³⁾や炉内構造物等の特殊な廃棄物はコンクリート製の保管施設を地下に設けて保管している²⁴⁾²⁵⁾²⁶⁾。

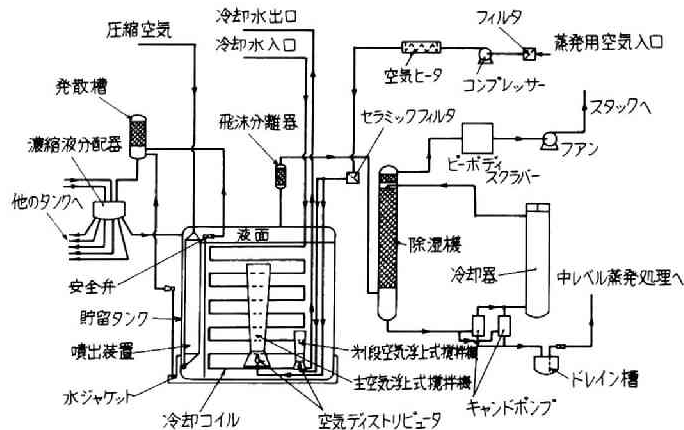


図 II - 1 - 2 高レベル廃液貯留タンクの一例²⁷⁾

また、固体状廃棄物とは別に核燃料再処理廃液のような高レベル廃液の場合は、ある程度濃縮した後に、図Ⅱ－１－２に示すような冷却コイル付きの特別製タンクで貯留したりしている²⁷⁾が現在ではなるべく早くガラス化して工学的貯蔵した後、地層処分をする方向をめざしている⁴⁷⁾⁴⁸⁾⁴⁹⁾。

(3) 放射性核種の地中移動に関する研究

放射性核種が陸地保管地から事故等の原因で地中に浸入して移動する時の移動速度は土の有するイオン交換能によって非常に遅くなるが、この現象を説明するための基礎的研究は非常に多くなされており、特に飽和帯水層における移動現象に関して第1編第1章で述べたように Thomas²⁸⁾、Hiester および Vermeulen²⁹⁾、井上³⁰⁾等によって多くの提案がなされ、なかでも井上の理論³⁰⁾が地中での実情に一番良く対応できることが知られている。

また、不飽和層における放射性核種の移動についても一部研究がなされており³¹⁾、筆者も第1編第2章、第3章において述べたように、放射性核種の土壌への分配におよぼす地下水中の陽イオンの影響について研究を行った³²⁾³³⁾⁵¹⁾。

さらに、核燃料再処理廃水のように硝酸濃度が高い廃水が地中に混入した場合にも筆者が第1編第4章で述べた研究結果³⁴⁾³⁵⁾を用いれば廃水中核種の挙動を簡単に試算することができる。

しかし、以上述べた研究成果は、すべて基礎的な研究であって、地下水の移動に対する放射性核種の移動の遅れを説明しているものである。したがって実際の陸地保管地における放射性核種の地中移動を工学的に研究するためには、陸地保管地周辺の地下水の有無、地下水位、地下水流速、地下水水質、土質、地層構造、降雨量等の調査解析を行わなければならない。

たとえば、カナダの Chalk River 研究所では地中処分した放射性核種の挙動を地下水や土砂を直接採取することによって把握している²⁴⁾、我国においても井上が、日本原子力研究所東海研究所および大洗研究所について地下水の放射能汚染調査を行っている³⁶⁾。また、井上、森沢は地中処分場の立地選定という立場から、地中での放射性核種の移動におよぼす種々の要因の影響力についての研究を行っている³⁷⁾³⁸⁾³⁹⁾。しかし、放射性核種の地中での挙動は目的とする陸地保管地ごとに特有の挙動を示すので、井上らの方法³⁰⁾³⁷⁾³⁸⁾³⁹⁾で目的とする保管地ごとに挙動調査を行う必要がある。

(4) 放射性核種の大気中での移動に関する研究

この問題は、陸地保管中に火災により放射性廃棄物（燃える恐れのあるものとしては、圧縮処理だけを行った可燃性廃棄物、フィルターケーキ⁴¹⁾、アスファルト固化体等が考えられる）が燃え、放射性核種が大気中に拡散した時に生じる。

この場合には現象を大気拡散と沈着とに分けて取り扱うのが妥当と考えられ、特に拡散に関しては原子力気象の分野で多くの研究がなされている⁴⁰⁾。また沈着に関してもその重要性が注目され、現在研究が進められている⁴¹⁾。

なお、この問題は、前述の保管方法とも関連しており、燃える恐れのある廃棄物と燃えないセメント固化体などを、互いにうまく配置することによって火災の拡大を防止するような考慮が必要と考えられる。

(5) 放射性廃棄物からの外部被曝に関する研究

この問題は主として、陸地保管中の放射性廃棄物が放出する放射線（主としてγ線）によって、人体が直接被曝する危険を検討するのが目的である。この場合、敷地境界までは、ある程度距離があるため、いわゆる遠方へ到達するγ線が問題となる。このγ線は線源からの直接γ線と、スカイシャインと呼ばれ、上空に放射後、空気中での散乱により地表に到達するものとに分けられるが、いずれの場合についても、大規模な原子炉事故の際の被曝評価の立場から研究がなされている⁴²⁾。また、放射性核種が火災により大気中に拡散された場合にも直接被曝の問題が生じるが、この場合についてもすでに研究がなされている⁴⁰⁾⁴²⁾。

またこの問題は前述の保管方法とも関連しており、保管施設を地下、半地下構造にしたり、保管施設の外壁の厚さを増したり、高線量の廃棄物を真中におき、外側を低線量の廃棄物で囲うというような対策を考慮する必要がある。

(6) モニタリングに関する研究

保管地周辺にはモニタリング用機器を設けて、万一保管中の放射性廃棄物から放射性核種が離脱し地中に浸入して移動したり、大気中に放出され拡散したりした場合に出来るだけ早く発見し、かつ有効に実態を把握したり、また、スカイシャイン等で地表に散乱するγ線の量を正確に有効に測定したりする必要がある。

このうち、大気中に拡散した放射性核種や直接廃棄物から放出されるγ線などの測定機器や測定位置などについては十分な研究がなされている⁴⁰⁾⁴²⁾。

一方、地中を移動する放射性核種のモニタリング法に関しては、理論的な核種の移動予測をもとにモニタリング位置を設置した例はほとんどないが、最近、わが国において井上らが具体的な方法を検討している⁴³⁾。なお、モニタリング位置の決定法は保管地ごとに固有のものであると考えられる。

また、放射性核種が地中を移動する場合、放射性核種は土壌の有するイオン交換能によって分配され、その移動速度はきわめておそいため³⁰⁾、モニタリング位置まで到達した場合には、その濃度は非常に小さくて、モニタリング位置で地下水を採取して、これを濃縮乾固しても放射能検出器に十分に測定できない可能性がある。この場合に、モニタリング地点で地中から土砂を採取すると、たとえば⁹⁰Srの場合には一般に分配係数が100 ml/g程度³³⁾すなわち土砂に分配された⁹⁰Sr濃度の方が地下水中の⁹⁰Sr濃度よりも2桁程度高いので、これを少量の高濃度塩酸などで分離し、測定すれば、地下水を濃縮乾固して測定するよりも測定精度が良くなるといったことが考えられる。

(7) 人体への影響に関する研究

陸地保管中に放射性廃棄物中の放射性核種が、浸水、火災等の事故により、地中または大気中へ移行した場合、放射性核種は最終的には、直接または動物等を経て人間に摂取され、内部被曝によって人体は影響を受ける。また、前述したように放射性廃棄物の線量が高い場合には、スカイシャイン等によって直接人体が影響を受ける恐れがある。

したがって、この問題に関しては早くから研究が行われ、動植物への放射性核種の移行に関する問題、人体への摂取後の影響の問題等を中心として、国際放射線防護委員会 (ICRP) の勧告をはじめとして多くの研究成果が発表されている⁴⁴⁾⁴⁵⁾。また、わが国においても、原子力委員会環境・安全専門部会等が報告書を出しており⁴⁶⁾⁴⁰⁾、この問題に関しては十分な研究がなされている。

以上、放射性廃棄物の陸地保管における工学的研究の現状と問題点とについて図Ⅱ-1-1に沿って簡単に述べた。

第3節 本編の目的と意義

前節において、放射性廃棄物の陸地保管に関する工学的研究の現状について簡単に述べたが、この結果、特に研究を進める必要がある課題としては、陸地保管を目的とした放射性廃棄物の固化法に関する研究、保管法に関する研究、目的とする陸地保管地域における放射性核種の地下移動に関する研究などが考えられる。

このうち、保管法に関する問題は、法律で許容される限界、保管される廃棄物の形態、保管地周辺における放射性核種の地中および大気中での挙動、保管地周辺の人口をはじめとする環境形態などが定まれば必然的に決定されるべきもので、個々の工学的研究として取り扱う問題ではなくて、もっと総合的、実践的な問題であると考えられるので本編では取り上げなかった。

そこで本編では他の2つの課題について研究を行った、すなわち第2章においては我国の某原子力施設構内における放射性核種の地中移動に関する調査研究を行った結果を述べ、第3章においては陸地保管を目的とした放射性廃棄物の固化法のうちセメント固化に関して行った研究結果について述べる。

第Ⅱ編第1章の参考文献

- 1) IAEA; "Treatment and Storage of High-Level Radioactive Wastes", Proceedings of the Symposium on Treatment and Storage of High-Level Radioactive Wastes in Vienna, 8-12 October 1962 (1963).
- 2) 筒井天尊、下浦一邦; "京都大学原子炉実験所放射性廃棄物処理施設の設計", KURRI-TR-80 (1970).
- 3) 町田忠司、古平 登; 日本原子力学会誌、17, 661 (1975).
- 4) 能見光彦; "中、低レベル放射性廃棄物の固型化", FAPIG, 70, 103 (1973).
- 5) 森山昇他; "プラスチックによる使用済イオン交換樹脂の熔融固化・3", JAERI-memo 6277 (1975).
- 6) 寺島 泰; "放射性廃棄物の固化処理と海洋投棄処分とに関する研究", 京都大学学位論文 (1969).

- 7) 原子力安全研究協会編；“放射性廃棄物の固化試験、固体廃棄物処理処分委員会”，33（1973）.
- 8) 永倉 正；原子力産業会議原動研年次大会報告書（1972）.
- 9) 阿部博俊他；電力中央研究所技術第二研究所報告，71005，（1971）.
- 10) 江村悟他；“放射性廃棄物セメント固化体の安全評価 1.セメント固化体からの¹³⁷Csの浸出”，JAERI-M 5779（1974）.
- 11) 松鶴秀夫他；“放射性廃棄物セメント固化体の安全評価 2.セメント固化体からの⁶⁰Coの浸出”，JAERI-M 6361（1976）.
- 12) 関 晋 他；“海洋投棄にそなえたセメント均一固化体の高水圧試験”，JAERI-M 6364（1976）.
- 13) 関 晋 他；“実大固化体高圧RI浸出試験装置”，JAERI-M 6364（1976）.
- 14) 能見光彦；原子力工業，17，№11（1971）.
- 15) 井上頼輝、森沢真輔；保健物理，5，75（1970）.
- 16) 筒井天尊、西牧研壮；保健物理，9，87（1974）.
- 17) IAEA Safety Series №6；“Regulations for the Safety Series №6”，1973 Revised Edition.
- 18) IAEA Safety Series №37；“Advisory Material for the Application of the IAEA Transport Regulations.”
- 19) Howells,H.；“Trench disposal of solid radioactive waste from the Windscale and Colder Works of the UKAEA”，Disposal of Radioactive Wastes into the Ground, IAEA SM-93/2, 3（1967）.
- 20) Enders,J.W.；“Solid radioactive waste disposal at the Los Alamos Scientific Laboratory”，Disposal of Radioactive Wastes into the Ground, IAEA SM-93/3, 17（1967）.
- 21) Marter,W.L.；“Ground waste disposal practices at the Savannah River plant”，Disposal of Radioactive Wastes into the Ground, IAEA SM-93/7, 95（1967）.
- 22) 日本原子力研究所；“東海研究所における放射性廃棄物処理関係設備の概要”，JAERI-memo 4049（1969）.
- 23) 井上頼輝；“放射性廃棄物の地中処分に関する基礎的研究”，京都大学学位論文，6（1970）.

- 24) Merritt, W.F. and C.A. Mawson; "Experiences with ground disposal at Chalk River", Disposal of Radioactive Wastes into the Ground, IAEA, **SM-93/6**, 79 (1967).
- 25) Mawson, C.A.; "Nuclear waste management in Canada", Jour. Water Pollution Control Federation, **35**, 1055 (1963).
- 26) Beard, S.J. and W.L. Godfrey; "Waste disposal into the ground at Handford", Disposal of Radioactive Wastes into the Ground IAEA, **SM-93/9** 123 (1967).
- 27) Clelland, D.W.; "Concentration and Storage of High-Active Wastes from the First Stages of the United Kingdom Civil Nuclear Power Programme", Treatment and Storage of High-Level Radioactive Wastes, IAEA, Vienna, 63 (1963).
- 28) Thomas, H.C.; Jour. Am. Chem. Soc., **66**, 1664 (1954).
- 29) Hiester, N.K. and T. Vermeulen; Chem. Eng. Progress, **48**, 505 (1952).
- 30) Inoue, Y. and W.J. Kanfman; Health Phys., **9**, 705 (1963).
- 31) 井上頼輝、赤木文行; "地下通気層における放射性核種の挙動について", 土木学会第26回年次学術講演会要旨集(II), 633 (1971).
- 32) 筒井天尊、西牧研壮; 保健物理, **10**, 79 (1975).
- 33) 筒井天尊、西牧研壮; 保健物理, **10**, 203 (1975).
- 34) 岩井重久、井上頼輝、西牧研壮; 日本原子力学会誌, **10**, 435 (1968).
- 35) 筒井天尊、西牧研壮; 土木学会論文報告集、第200号, 25 (1972).
- 36) 井上頼輝; "放射性廃棄物の地中処分に關する基礎的研究", 京都大学学位論文, 100 (1970).
- 37) 井上頼輝、森沢真輔; 日本原子力学会誌, **14**, 552 (1972).
- 38) 井上頼輝、森沢真輔; 日本原子力学会誌, **14**, 652 (1972).
- 39) 井上頼輝、森沢真輔; 日本原子力学会誌, **15**, 126 (1973).
- 40) 日本原子力学会; "環境被曝線量評価", 「環境被曝線量評価」研究専門委員会, 78 (1975).
- 41) 筒井天尊、塚谷恒雄; "放射性物質焼却炉からの排気による拡散沈着の評価に關する報告", 土木学会原子力土木委員会 (1973).

- 42) 角川正義；“原子炉災害対策用野外放射線監視システムに関する考察”，JAERI-1193（1971）。
- 43) 井上頼輝、森沢真輔；“放射性廃棄物地中処分場のモニタリングについて”，土木学会第28回年次学術講演会概要集（Ⅱ），509（1973）。
- 44) 日本放射性同位元素協会他；“国際放射線防護委員会勧告、ICRP Publication 2”（1960）。
- 45) 日本放射性同位元素協会他；“国際放射線防護委員会勧告、ICRP Publication 9”（1974）。
- 46) 原子力委員会、環境・安全専門部会；“第3部 環境放射能分科会報告書”（1974）。
- 47) Halaszovich, St. et al; “FIPS-A Process for the Solidification of Fission Product Solutions Using a Drum Drier”, International Symposium on the Management of Radioactive Wastes from the Nuclear Fuel Cycle, IAEA, **SM-207/19**（1976）。
- 48) Guber, W. et al; “Lab Scale and Pilot Plant Experiments on the Solidification of High Level Wastes at the Karlsruhe Nuclear Research Center”, International Symposium on the Management of Radioactive Wastes from the Nuclear Fuel Cycle, IAEA, **SM-207/79**（1976）。
- 49) Bocola, W.; “Hot-cell Experiments of the Pot-Vitrification of Fully Radioactive Fuel Reprocessing Wastes” International Symposium on the Management of Radioactive Wastes from the Nuclear Fuel Cycle, IAEA, **SM-207/85**（1976）。
- 50) 原子力環境整備センター；“低レベル放射性廃棄物の処理・処分に関するフェージビリティ調査報告書”，39（1977）
- 51) 筒井天尊、西牧研壮；“放射性核種の土砂への分配に関する基礎的研究”，KURRI-TR-151（1977）。
- 52) 原子力安全研究協会；“放射性廃棄物の陸地保管施設の基準化のための調査研究、昭和51年度放射性廃棄物処理処分対策調査研究”，28（1977）。

第2章 某原子力施設構内における放射性核種の地中移動に関する調査研究

第1節 はしがき

放射性廃棄物を陸地保管するにあたって重要な問題の1つは放射性核種が管理地点から事故等の原因により地中に漏洩した場合に、どのような挙動をとり、敷地外に移行し、最終的に人体にどのような影響を与えるかをあらかじめ評価しておくことである。

原子力施設における放射性核種の移動に関する調査に関しては、井上¹⁾が日本原子力東海研究所および大洗研究所構内で行ったものがある。また井上および森沢²⁾³⁾⁴⁾は放射性廃棄物の地中処分場の立地選定の立場から人体への影響に致るまでの試算を行っている。

ところで放射性核種が地中でどのような挙動をとるかについては多くの研究がなされ第I編第1章で述べたように井上の提案した理論⁵⁾が実際の地層における放射性核種の移動と良く一致する。すなわち井上は

$$K_f = 1 + \frac{1-f}{f} \rho \cdot K_d \quad (\text{II-2-1})$$

ただし f : 地層の空隙率

ρ : 地層を構成する土砂の密度

K_d : 放射性核種の分配係数

で表される K_f 値を示し、あらかじめ土砂に吸着しないトレーサーを用い、地中での水の挙動を調べておけば、放射性核種の挙動は水の挙動のうち経過時間だけを K_f 倍すると容易に求まることを示した⁵⁾。

ところが、実際に原子力施設構内などで放射性核種の挙動を調査しようとする、(II-2-1)式で示された K_f 値を求めるために地層の空隙率の測定、放射性核種の分配係数を測定するため大量の地下水の採取およびラジオアイソトープ実験用施設の有無などの問題また地中における水の挙動の調査など沢山の問題が生じてくる。

たとえば、前述した井上¹⁾が行った日本原子力研究所東海研究所および大洗研究所の場合は、分配係数の測定に関しては東海研究所のR I 使用施設を利用することができ、しかも両研究所とも海岸に面し、地下水が移動する帯水層は均質な砂層のため、

表層の砂を取り除き容易に帯水層を構成する土砂を採取できた。また浅層地下水も豊富で、過去何回かにわたって実施された地質調査ボーリング報告書をみると地下水位もわり合い良く調査されており Darcy の法則などを用いて地下水の流速および流れの方向などを推定することができた。また、井上および森沢が行った放射性廃棄物の地中処分の立地選定の研究では^{2) 3) 4)}、地下水流速、空隙率などについて標準的な値を仮定して研究を進めている。

しかし、現実には原子力施設において敷地内のある場所で放射性廃棄物を陸地保管しようとする場合は、種々の制約（例えば主施設の位置等）から保管場所が決まってしまうことが多い。このような場合には、現地およびその近辺での施設を用いて分配係数を測定することができないとか、地下水の動向がつかめないなど、個々の陸地保管予定地固有の問題が生じてくる。そこで個々の陸地保管予定地について調査研究を行う必要がある。

本章では、我国の某原子力施設の陸地保管予定地について実際に野外実験を行い地下水の動向を調査し、これをもとに地中での放射性核種の挙動を推定した。

この陸地保管予定地の地形については次節で詳しく述べるが、泥岩基盤の上に段丘的に砂・粘土互層が堆積して形成されているため、この予定地が存る台地（通称 A ブロックと呼ぶ）には、上流からの浅層地水の流入が全くなく、降雨のみが浅層地下水の供給源である。そこで本調査研究では同心円的な観測井群を設け、トレーサーとして NaBr を添加した試水（以下原水と略記）を中心点から注入し、その後観測井より採取した地下水中の Br 濃度を測定し、原水の挙動を観察した。

一方、放射性核種の分配係数の測定は現地および某原子力施設内で行うことができなかったため、このような場所には現地で採取した土砂および地下水を京都大学原子炉実験所まで持ち帰り測定を行うことにしたが、I 編第 3 章で得られた結果を応用して、現地では地下水の総硬度のみを測定しておき、これをもとに Ca^{2+} のみで作成した模擬地下水を用いて分配係数を測定する方法を提案した。またその結果得られた測定結果を実際の地下水を用いて得られた結果と比較した。

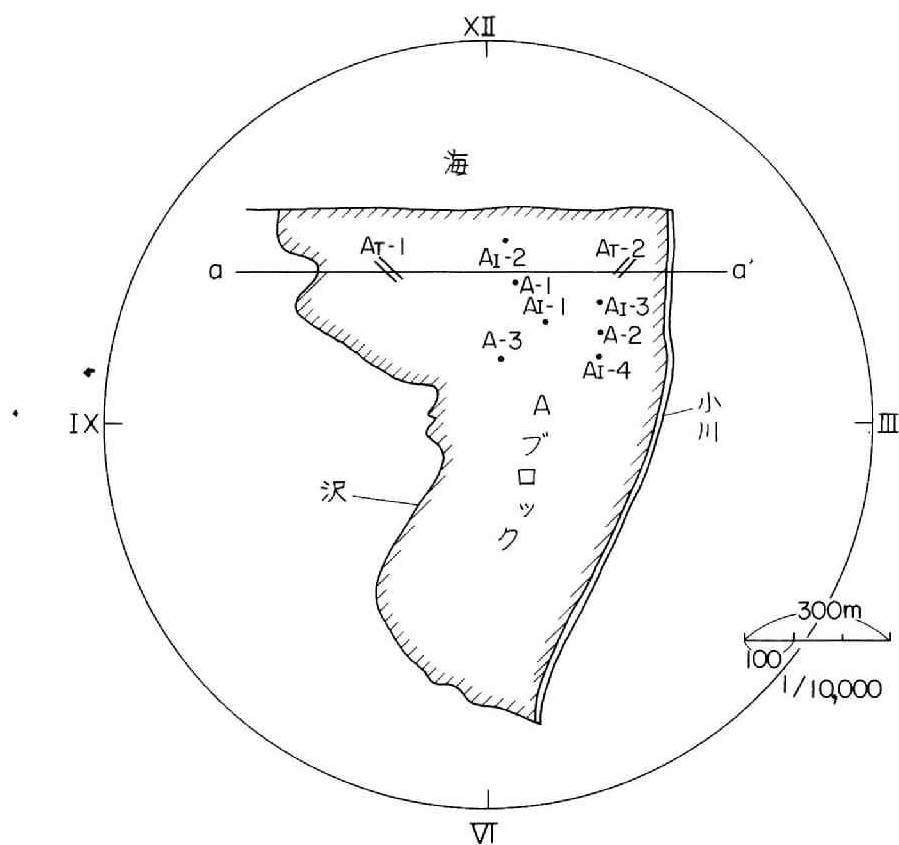
最後に野外実験の結果得られた地下水の動向と、屋内実験で得られた放射性核種の分配係数等をもとにして A ブロックのある地点から放射性核種が含まれた水が浸透した時に、放射性核種が地中を移動して行く様子を推定した。

第2節 野外実験

2-1 地形

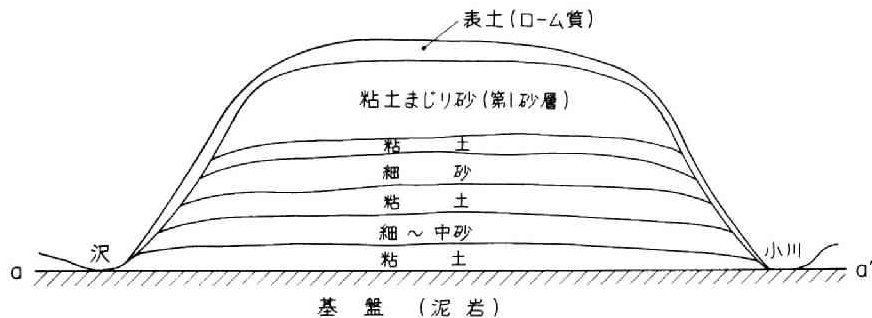
調査の対象とした予定地の概略図を図Ⅱ-2-1に示した。この予定地は通称Aブロック（以後Aブロックと呼ぶ）と呼ばれ、某原子力施設全敷地のうちのⅩ時（方位を図Ⅱ-2-1のように時計方位で表示する）側の一部である。

某原子力施設敷地は第三紀鮮新世末期の泥岩層を基盤として、その上に第四紀洪積世時代の砂・粘土互層が、20～30mの層厚で堆積し、丘陵性低台地を形成したもののよ



図Ⅱ-2-1 Aブロックの平面図

りなり、小河川の侵蝕および海の波浪侵蝕により4つのブロックに区分されていて、いま調査の対象としているAブロックはこれらの4つのブロックのうちの1つである。



図Ⅱ－２－２ Aブロックのa-a'断面における概略図

図Ⅱ－２－１に示されたAブロックをa-a'断面で断面図を描くと図Ⅱ－２－２のようになる。この図はAブロックを形成する砂・粘土互層の様子を示した模式図で、実際の地形断面を縮尺したものではない。基盤の泥岩層は図Ⅱ－２－１のⅫ時方向へ2～3°傾斜しており、この上に堆積した砂・粘土互層もほぼ同じ傾斜を持っている。

放射性廃棄物の陸地保管地点より放射性核種が地中に侵入した場合に放射性核種が移動するのは主として図Ⅱ－２－２の表土の次の地層である。図Ⅱ－２－２はAブロックのⅢ時Ⅸ時断面であるが、Ⅻ時Ⅶ時断面もほぼ同じ形をしているため、第1砂層（表土の次の地層を今後このように呼ぶ）の地下水はAブロック以外からは流入せず、降雨のみによって供給されることになる。しかも第1砂層から流出する地下水は直接海へ流出するか、一度沢または小川に流出し海へ運ばれるかで、他のブロックまたは敷地外へは流入しない。また、供給源が降雨だけのためか地下水深は降雨によって大きく変動し、晴天続きの時と長雨の時とでは最大約2mの差がみられる。なお以上のようなAブロックの地形の概略は図Ⅱ－２－１のA-1～A-3の3地点でのコアボーリング、A_I-1の地点での19本の観測井群設置に先立つボーリング、A_T-1、A_T-2の2地点でのトレンチ（斜面に沿って表土を取り除き、巾1m程度の溝を切り開き砂・粘土の互層を露出させたもの）および他ブロックでのボーリング等の調査などを参考にして得たものである。

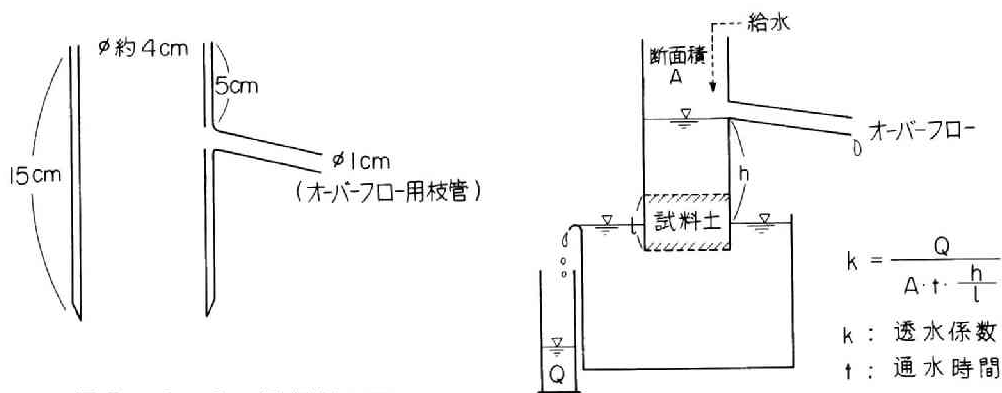
2-2 土質試験

図Ⅱ－２－１に示したA_T-1、A_T-2地点は丁度丘陵の斜面にあたるので、巾1m

程度で表土を取り除き、砂・粘土互層を露出させるのを目的としてトレンチを掘削した。トレンチ内に露出した第1砂層内の粘土まじり中砂は肉眼で均質に見えなかったので、両トレンチより代表的な試料を数ヶ所ずつ採取した。これらの試料を用いて透水係数、仮比重、真比重、空隙率、最大容水量などの測定を行った。また、長雨の後には地下水位が表土層まで到達することがあるので表土層からも試料採取を行った。

a. 透水係数の測定

図Ⅱ-2-3のような鉄製円筒採土器を作成し、これを両トレンチ第1砂層および表土層に3～4cm程度打ち込み、不攪乱試料を採取した。



これらの試料を図Ⅱ-2-4のようにセットして、定水頭法⁶⁾により透水係数を求めた。

図Ⅱ-2-4 透水係数測定法

測定値は表Ⅱ-2-1に示すとおりであるが、この値は1試料について異なる3とおりの通水時間によって測定して得られた値を平均して求めたものである。表Ⅱ-2-1によれば各試料の透水係数は 10^{-8} cm/sec から 10^{-4} cm/sec の間で変化しており、調査の対象としている第1砂層(第2, 第3砂層についても併せて実験を行ったが同じような結果が得られた)での透水係数はこの程度の値を示すものと考えられる。

表Ⅱ-2-1 透水係数の測定結果

試料名	透水係数 cm/sec
A _T -1 粘土まじり細砂	2.5×10^{-4}
A _T -1 粘土まじり中砂	9.3×10^{-4}
A _T -2 粘土まじり細砂	3.7×10^{-4}
A _T -2 粘土まじり中砂	1.1×10^{-3}
A _T -1 表土	1.2×10^{-3}

b. 仮比重、真比重、空隙率の測定

直径 5 cm、高さ 5 cm の円筒採土器を用いて、両トレンチの第 1 砂層および表土層より不攪乱試料を採取した。これらの試料を 110℃ で乾燥させた後、重量を測定して、みかけの比重すなわち仮比重を計算した。つぎにこれらの乾燥試料の一部について、ピクノメータを用いて、試料の真比重を求めた。仮比重、真比重の値から空隙率を $1 - (\text{仮比重} / \text{真比重})$ として出した。この結果を表Ⅱ-2-2 に示した。表Ⅱ-2-2 をみると各試料の真比重、空隙率はすこしばらつくが、簡便のため平均値を求め、以後の種々の解析において、第 1 砂層の地下水の流れる部分の空隙率として 0.40、密度としては 2.65 g/ml の値を使用することにした。

表Ⅱ-2-2 比重、空隙率の測定結果

試料名	仮比重	真比重	空隙率
A _T -1 粘土まじり細砂	1.63	2.64	0.384
A _T -1 粘土まじり中砂	1.55	2.64	0.412
A _T -2 粘土まじり細砂	1.62	2.60	0.378
A _T -2 粘土まじり中砂	1.53	2.65	0.423
A _T -1 表土	1.46	2.59	0.437

c. 最大容水量の測定

最大容水量すなわち土砂が毛管力によって保持できる水分の最大量を測定するため、直径 5 cm、高さ 10 cm のガラス円筒に、両トレンチ第 1 砂層および表土層より採取した試料砂をつめ供試体を作成した。これを、水を満たしたシャーレの上に置き一昼夜放置した後、中央部水面より 5 cm 上の土を採取し、試料の重量を測定し、ついで 110℃ で乾燥させ、再び試料の重量を測定し、試料砂 100 g が保有した水量を測定し、最大容水量を求めた。これらの値を表Ⅱ-2-3 に示した。なおこれらの試料砂の自然状態での 100 g の空隙量もあわせて

表Ⅱ-2-3 最大容水量の測定結果

試料名	最大容水量 ml/100g	空隙量 ml/100g
A _T -1 粘土まじり細砂	28.2	21.3
A _T -1 粘土まじり中砂	34.8	26.4
A _T -2 粘土まじり細砂	30.2	22.8
A _T -2 粘土まじり中砂	35.9	27.8
A _T -1 表土	35.7	29.8

表Ⅱ－２－３に示した。

表Ⅱ－２－３において最大含水量が自然状態の空隙量を上まわるのは、最大含水量測定時の試料が攪乱試料であったため、この空隙量が自然状態での空隙量を上まわり、この空隙にも水を保持したためと考えられる。いずれにしてもAブロック第1砂層（第2砂層、第3砂層についても同じ結果が得られた）および表土層は大量の降雨があった場合には、充分空隙量まで水を保持することがわかった。

2-3 浸入能測定試験

Aブロックは小高い段丘の上に位置するため、この調査研究で問題としている第1砂層の浅層地下水に関しては敷地外からの地下水の流入が全く考えられないことはすでに述べた。したがって雨水が地表から浸透し、浅層地下水を形成していると考えられ、また放射性廃棄物からの放射性核種の漏洩を考えた場合にも、雨水により放射性核種が溶出し、雨水とともに地中に浸入していく過程が考えられるので、どの程度の雨水が地中に浸入していくかを知るため、浸入能の測定を行った。

a. 測定装置

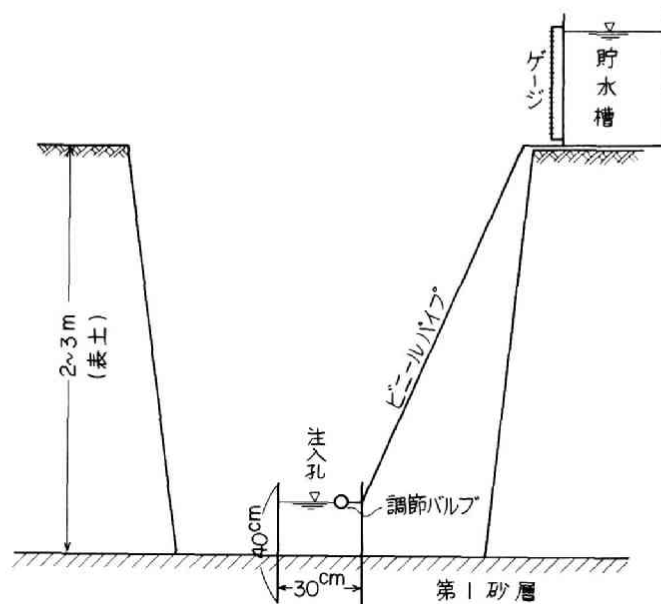
図Ⅱ－２－１に示したA_I－1～A_I－4の4地点に測定装置を設けた。測定装置の概略は図Ⅱ－２－５に示した。

まず、表土を取り除き第1砂層の上限を露出させ、ここに直径30cm、長さ40cmの塩化ビニルパイプを15cm程度打ち込んで注入孔とした。注入孔の上部に、水位を一定に保てるような仕組みになった調節バルブを取りつけた。注水は200ℓドラム缶に水位測定用ゲージを取りつけ、貯水槽としたものに水道水をあらかじめ貯留しておき、水位調節バルブを通して注入孔に通水した。注入孔の水位は調節バルブの作用によってほぼ一定に保つことができ、注入速度は貯水槽の水位低下をゲージで読みとり、水位低下の値から注入孔での注入速度を算出して、浸入能を求めた。

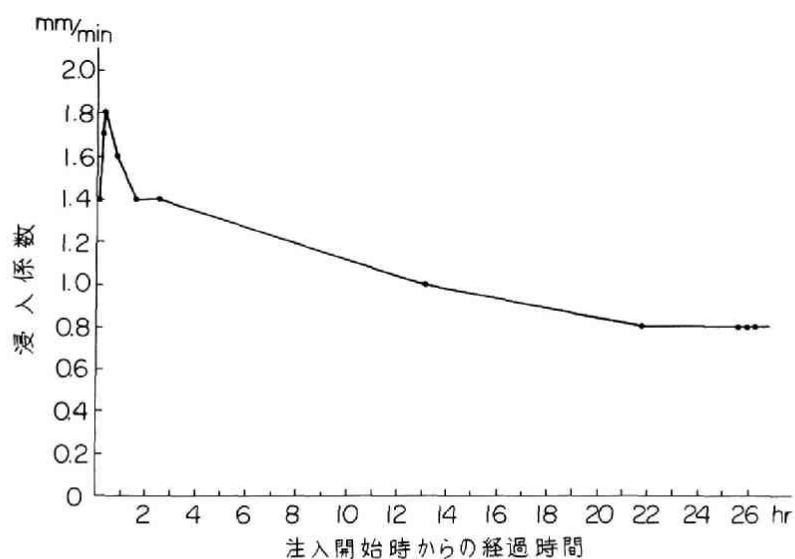
b. 測定結果

浸入能値は水の地中への浸入速度を示しているので、当然浸入される地層の含水率および透水係数が大きく影響を与えるものと考えられる。

そこで一例として図Ⅱ－２－６に示すようにA_I－2の地点で行った浸入能測定結果について検討してみる。図Ⅱ－２－６は注入孔において浸入面までの水深が常に20cm



図Ⅱ-2-5 浸入能測定装置



図Ⅱ-2-6 浸入能の時間変化 (A_I-2・S・46・12 18)

に保たれている状態で連続的に注入していった時の浸入能の時間変化を示したものである。なお、この測定を行う前、約 50 日間は全然降雨がなかったので、地層はかなり乾いた状態にあったと考えられる。図Ⅱ－2－6において始めの 20 分間程度に浸入能が幾分増加したのは、地層が乾いていたため、いわゆる水が土になじむのに時間がすこしかかったものと思われる。この後、連続的に注水しているため、地層の含水率はしだいに飽和状態に近づき、これにつれて浸入能は徐々に低下していき、ついには注水開始後、約 20 時間を経過したあたりで浸入能は一定値を示し、変化しなくなるのが観察できた。したがってこの時には地層の含水率もほぼ飽和に達し、定常状態にあると考え、この時の浸入能値をこの地点の浸入能値として採用することにした。

そこで各測定地点の浸入能測定にあたっては前述したような理由で、1～2 日間連続的に注水を行いつつ、浸入能値を測定し、測定値が一定値になるのが観察できてから改めて浸入能値の測定を行った。

表Ⅱ－2－4 浸入能測定結果

測定点	測定日	浸入面までの水深	浸入能
A _I －1	S・47・6・9	64.2 cm	5.3 mm/min
A _I －2	S・46・12・18	16.0 "	0.8 "
A _I －3	S・46・12・18	20.0 "	0.9 "
A _I －4	S・46・12・18	19.0 "	2.3 "

測定結果を表Ⅱ－2－4 に示した。

表Ⅱ－2－4 のうち A_I－1 の地点の浸入能値が大きく出たのは、この浸入孔を次項で述べる現場注水試験の時の原水の注入孔として利用したので、浸入能を高めて原水を早く注入しようとしたため、浸入面までの水深を大きくしたためである。いずれにしても表Ⅱ－2－4 において最も少ないものでも 0.8 mm/min 程度の浸入能があり、1 時間で 48 mm、1 日で約 1000 mm 程度となる。したがって地表の傾斜の急な斜面においては、若干の表面流が考えられるが、平坦部においては初期雨量 50 mm/hr 程度までは表面流出は考えられない。この地方は年雨量も比較的少なく（50 年平均で 1500 mm）、平坦部の降雨は、ほとんど地中に浸入するものと考えてさしつかえない。この現象は本節 2－1 で述べたように地下水位が晴天続きの時と長雨の時とでは最大約 2 m の差が見られることからわかる。もちろん地下水上昇の形で土壌中に保有された降雨は、蒸発散によって、約 1200 mm/年が大気中に還元されるので、実際に地下水として流れる量は降雨の 20% 以下である。

2－4 現場注水試験

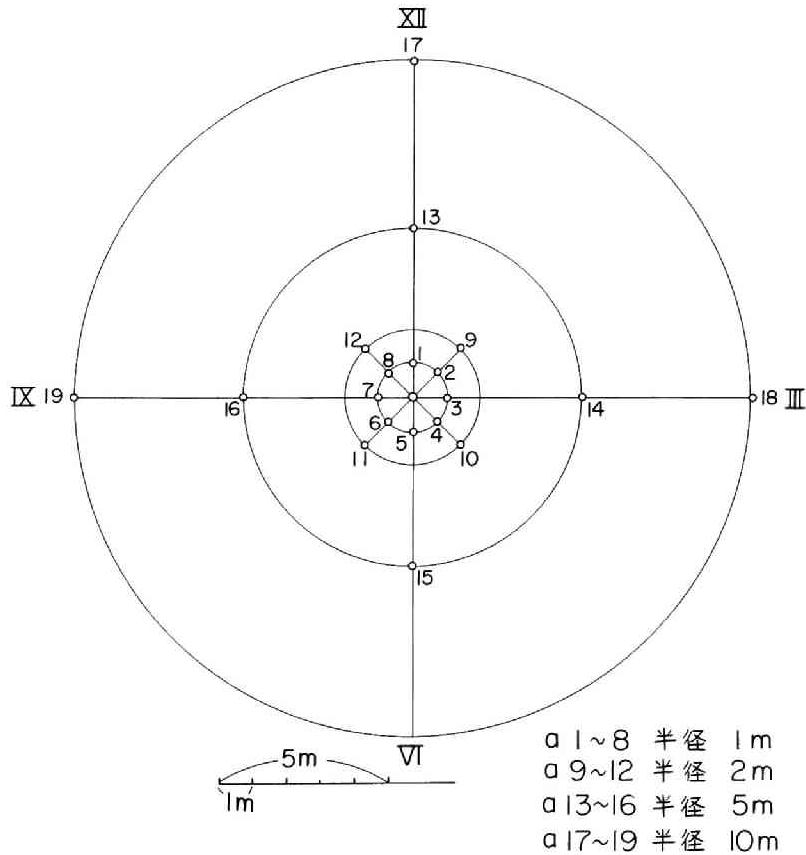
A ブロックの放射性廃棄物保管予定地から放射性核種が地中に浸入する様子を想定

すると、浸水事故等により放射性廃棄物から放射性核種が溶出し、水中に移行し、この水とともに地中に浸入して行くのが普通であると考えられる。しかもこの放射性核種を含んだ水の量は無限にあるのではなく、有限な量が地中に浸入すると考えるのが普通である。

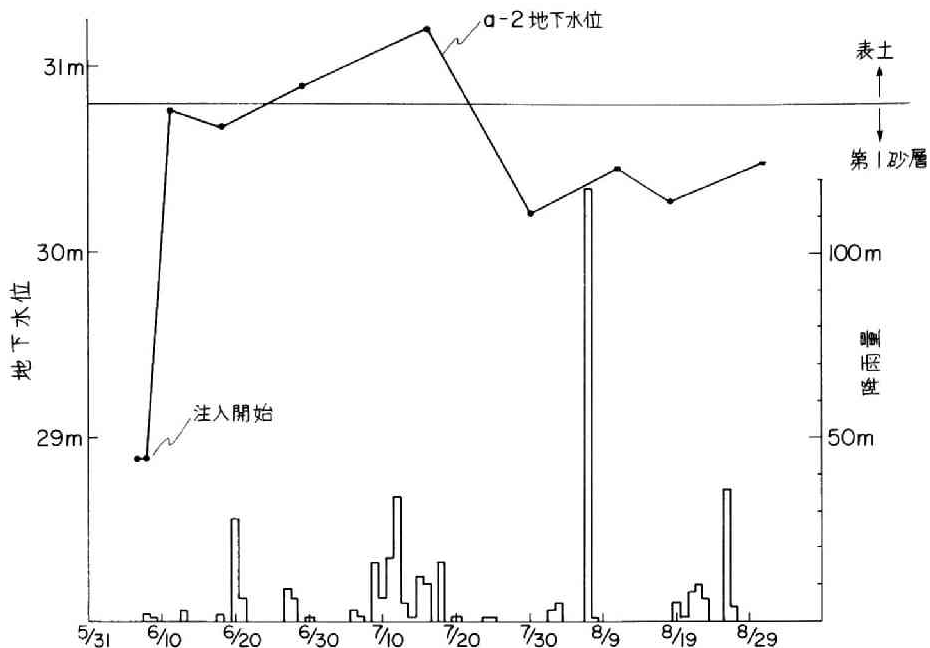
そこで本項では図Ⅱ－２－１のA_I－１地点より、有限な量の水が地中に浸入した場合にその水がどのような挙動をとるかを直接野外実験を行い調査した。水のトレーサとしてNaBrを添加した原水をA_I－１の浸入能測定用注入孔から注入し、A_I－１のまわりに同心円状に配置した各観測井から定期的に水を採取し、水中のNaBr濃度を測定して、第１砂層中での注入原水の挙動を調べた。

a. 観測井の配置

図Ⅱ－２－１のA_I－１の周囲に同心円状に19本の観測井を配置した。各観測井の



図Ⅱ－２－７ 注水試験用観測井配置図



図Ⅱ－２－９ a－２における地下水位変化

1月間で約30mm程度しか降雨がなかったため地下水位が低下していたものと考えられる。この後原水600ℓと井戸水8000ℓを17日間で注入した（連続降雨に相当する）ので地下水位が31m程度まで上昇したものと考えられ、地下水面が表土層にまで到達したのが見うけられた。またこの後の地下水位も降雨が数日間みられない時に測定したが30.4m程度を示し、注入開始前の28.9mまでは低下しなかった。結局図Ⅱ－２－9からAブロックの第1砂層の地下水位は降雨があれば急激に増加し、その後ゆっくりと地下水位が低下するのが読みとれた。すなわち第1砂層は保水率が大きく、透水係数が小さいことが顕著にあらわれており、この現象は本節2－2項で行った土質試験の結果と傾向が一致する。

c. 試験方法

A_I-1を用いて図Ⅱ－２－5で示したのと同様の方法で注水を行った。A_I-1は始め図Ⅱ－２－5に示すように表土を取り去って注入装置を設置したが、地下水位が上昇した時に、たて穴が浸水するため、表土を埋め戻して、注入孔のパイプを地表まで延長した。

表Ⅱ-2-5 A プロット Br 濃度 原水濃度 (47.6/8 9h 30m) $2.45 \times 10^{-2} \text{ M/l}$ < 10^{-5} 10^{-5} M/l 以下 10^{-5} M/l 以上

~ 0 検出できず

採取日	a-1	a-2	a-3	a-4	a-5	a-6	a-7	a-8	a-9	a-10	a-11	a-12	a-13	a-14	a-15	a-16	a-17	a-18	a-19
6. 8 17:00	1.17×10^{-2}	6.30×10^{-3}	9.40×10^{-3}	5.25×10^{-3}	1.25×10^{-2}	8.45×10^{-3}	1.10×10^{-2}	8.20×10^{-3}											
6. 9 10:00	5.00×10^{-3}	1.35×10^{-3}	3.95×10^{-3}	4.45×10^{-3}	6.95×10^{-3}	2.75×10^{-3}	8.15×10^{-3}	2.00×10^{-3}	4.26×10^{-4}	7.15×10^{-4}	1.80×10^{-4}	1.15×10^{-4}	~ 0	~ 0	~ 0	~ 0			
6. 9 17:30	2.85×10^{-3}	1.25×10^{-3}	3.75×10^{-3}	2.45×10^{-3}	5.15×10^{-3}	2.80×10^{-3}	2.35×10^{-3}	1.55×10^{-3}											
6.10 9:00	1.85×10^{-3}	7.45×10^{-4}	1.50×10^{-3}	9.75×10^{-4}	5.25×10^{-3}	1.05×10^{-3}	1.10×10^{-3}	7.35×10^{-4}											
6.10 18:00	1.15×10^{-3}	6.95×10^{-4}	9.80×10^{-4}	3.95×10^{-4}	5.85×10^{-3}	7.55×10^{-4}	4.95×10^{-4}	6.05×10^{-4}	9.85×10^{-5}	4.55×10^{-4}	3.25×10^{-5}	9.55×10^{-5}	~ 0	~ 0	~ 0	~ 0			
6.11 10:00	3.95×10^{-4}	4.00×10^{-4}	3.80×10^{-4}	1.90×10^{-4}	1.85×10^{-3}	1.95×10^{-4}	4.30×10^{-4}	4.00×10^{-4}	7.55×10^{-5}	3.15×10^{-4}	5.20×10^{-5}	1.30×10^{-5}							
6.11 17:00	3.74×10^{-4}	2.90×10^{-4}	3.20×10^{-4}	2.40×10^{-4}	1.65×10^{-3}	1.85×10^{-4}	2.75×10^{-4}	3.25×10^{-4}	8.55×10^{-5}	3.95×10^{-4}	7.50×10^{-5}	8.15×10^{-5}							
6.12 11:30	2.15×10^{-4}	1.55×10^{-4}	1.35×10^{-4}	7.35×10^{-5}	3.85×10^{-4}	7.95×10^{-5}	1.25×10^{-4}	1.45×10^{-4}	1.20×10^{-4}	8.50×10^{-5}	8.55×10^{-5}	3.35×10^{-4}	< 10^{-5}	< 10^{-5}	< 10^{-5}	< 10^{-5}			
6.13 12:00	1.15×10^{-4}	1.65×10^{-4}	7.45×10^{-5}	2.85×10^{-5}	3.50×10^{-4}	4.05×10^{-5}	5.85×10^{-5}	1.50×10^{-4}	2.10×10^{-4}	9.25×10^{-5}	7.15×10^{-5}	5.10×10^{-4}							
6.14 16:00	1.25×10^{-4}	7.85×10^{-5}	3.85×10^{-5}	2.50×10^{-5}	2.45×10^{-4}	2.95×10^{-5}	5.95×10^{-5}	3.95×10^{-5}	3.45×10^{-4}	1.40×10^{-4}	2.55×10^{-5}	4.45×10^{-4}	< 10^{-5}	< 10^{-5}	< 10^{-5}	< 10^{-5}			
6.15 15:00	5.05×10^{-5}	7.05×10^{-5}	4.15×10^{-5}	1.65×10^{-5}	1.55×10^{-4}	2.50×10^{-5}	1.05×10^{-4}	2.80×10^{-5}	4.85×10^{-4}	1.60×10^{-4}	5.35×10^{-5}	5.45×10^{-4}							
6.16 14:00		4.05×10^{-5}	1.85×10^{-5}	< 10^{-5}	1.65×10^{-4}	1.25×10^{-5}	6.25×10^{-5}	1.00×10^{-5}	6.05×10^{-4}	2.45×10^{-4}	6.95×10^{-5}	6.20×10^{-4}							
6.17 10:00	3.65×10^{-5}	3.75×10^{-5}	1.30×10^{-5}	1.75×10^{-5}	1.30×10^{-4}	3.65×10^{-5}	2.35×10^{-5}	1.45×10^{-5}	1.00×10^{-3}	2.55×10^{-4}	2.05×10^{-4}	8.75×10^{-4}							
6.18 10:00	2.45×10^{-5}	6.50×10^{-5}	1.75×10^{-5}	2.10×10^{-5}	8.60×10^{-5}	9.15×10^{-5}	3.55×10^{-5}	8.90×10^{-6}	7.90×10^{-4}	5.15×10^{-4}	1.70×10^{-4}	7.20×10^{-4}							
6.19 10:00	5.65×10^{-5}	2.00×10^{-4}	2.45×10^{-5}	6.35×10^{-5}	3.85×10^{-5}	1.25×10^{-4}	4.35×10^{-5}	8.90×10^{-6}	9.85×10^{-4}	5.65×10^{-4}	2.45×10^{-4}	4.80×10^{-4}	< 10^{-5}	1.00×10^{-5}	1.85×10^{-5}	2.37×10^{-5}	~ 0	~ 0	~ 0
6.20 14:00	2.85×10^{-5}	1.65×10^{-4}	2.75×10^{-5}	1.15×10^{-4}	5.25×10^{-5}	1.95×10^{-4}	3.75×10^{-5}	1.55×10^{-5}	9.75×10^{-4}	5.20×10^{-4}	1.45×10^{-4}	5.10×10^{-4}							
6.21 14:00	3.55×10^{-5}	1.05×10^{-4}	2.60×10^{-5}	8.85×10^{-5}	8.00×10^{-5}	2.10×10^{-4}	4.65×10^{-5}	1.55×10^{-5}	5.90×10^{-4}	3.05×10^{-4}	1.05×10^{-4}	3.25×10^{-4}	< 10^{-5}	< 10^{-5}	< 10^{-5}	4.05×10^{-5}	~ 0	~ 0	~ 0
6.22 10:00	1.25×10^{-5}	4.20×10^{-5}	8.50×10^{-6}	8.55×10^{-5}	6.85×10^{-5}	6.15×10^{-5}	2.75×10^{-5}	< 10^{-5}	4.65×10^{-4}	1.25×10^{-4}	4.95×10^{-5}	3.15×10^{-4}	< 10^{-5}	< 10^{-5}	1.20×10^{-5}	1.65×10^{-5}			
6.23 13:30	9.50×10^{-6}	1.05×10^{-4}	2.85×10^{-5}	9.00×10^{-6}	6.60×10^{-5}	1.45×10^{-4}	3.05×10^{-5}	< 10^{-5}	4.55×10^{-4}	2.75×10^{-4}	6.00×10^{-5}	2.75×10^{-4}	< 10^{-5}	< 10^{-5}	9.20×10^{-6}	4.00×10^{-5}	~ 0	~ 0	~ 0
6.24 10:30	6.00×10^{-5}	1.10×10^{-4}	3.50×10^{-5}	8.90×10^{-5}	6.45×10^{-5}	1.55×10^{-4}	3.95×10^{-5}	8.00×10^{-6}	4.50×10^{-4}	2.95×10^{-4}	1.10×10^{-4}	2.55×10^{-4}	< 10^{-5}	< 10^{-5}	6.00×10^{-6}	4.20×10^{-5}			
6.25 11:30	9.60×10^{-5}	1.45×10^{-4}	6.50×10^{-5}	1.55×10^{-4}	1.15×10^{-4}	2.60×10^{-4}	4.20×10^{-5}	< 10^{-5}	4.40×10^{-4}	2.80×10^{-4}	8.05×10^{-5}	2.35×10^{-4}	< 10^{-5}	< 10^{-5}	7.50×10^{-6}	3.95×10^{-5}			

表 II - 2 - 6 A プロノク Br 濃度 原水濃度 (47.6/8 9h 30m) $2.45 \times 10^{-2} \text{ M/l}$

$< 10^{-5} \dots \dots 10^{-6} \text{ M/l}$ 以下 10^{-6} M/l 以上
 $\sim 0 \dots \dots$ 検出できず

採取日	a-1	a-2	a-3	a-4	a-5	a-6	a-7	a-8	a-9	a-10	a-11	a-12	a-13	a-14	a-15	a-16	a-17	a-18	a-19
6.26 14:00	1.35×10^{-4}	1.80×10^{-4}	2.20×10^{-4}	1.75×10^{-4}	2.10×10^{-4}	3.85×10^{-4}	6.20×10^{-5}	1.25×10^{-5}	8.35×10^{-4}	8.95×10^{-4}	1.70×10^{-4}	2.45×10^{-4}							
6.27 11:30	1.35×10^{-4}	1.50×10^{-4}	2.15×10^{-4}	1.90×10^{-4}	3.05×10^{-4}	3.70×10^{-4}	9.55×10^{-5}	1.65×10^{-5}	8.85×10^{-4}	3.45×10^{-4}	1.80×10^{-4}	2.50×10^{-4}	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	8.90×10^{-6}	5.85×10^{-5}			
6.28 11:30	7.75×10^{-4}	2.95×10^{-4}	1.70×10^{-3}	8.25×10^{-4}	5.25×10^{-4}	4.80×10^{-4}	2.50×10^{-4}	3.95×10^{-4}	1.20×10^{-4}	1.95×10^{-4}	2.90×10^{-5}	$< 10^{-6}$	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	1.25×10^{-5}	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$
6.29 11:30	8.50×10^{-4}	1.90×10^{-4}	2.35×10^{-4}	2.45×10^{-4}	1.10×10^{-3}	5.45×10^{-4}	5.60×10^{-4}	5.20×10^{-5}	2.25×10^{-4}	1.85×10^{-4}	2.80×10^{-5}	1.75×10^{-4}							
7. 1 10:00	8.95×10^{-4}	1.45×10^{-4}	6.85×10^{-5}	1.25×10^{-4}	1.80×10^{-3}	2.85×10^{-4}	3.75×10^{-4}	7.50×10^{-5}											
7. 2 14:30									3.25×10^{-4}	3.25×10^{-4}	2.75×10^{-5}	4.95×10^{-4}	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	5.50×10^{-6}	6.00×10^{-5}	6.00×10^{-6}	7.05×10^{-6}	$< 10^{-5}$
7. 3 14:30	1.70×10^{-4}	1.35×10^{-4}	8.10×10^{-5}	9.50×10^{-5}	1.25×10^{-3}	1.90×10^{-4}	1.55×10^{-4}	6.05×10^{-5}											
7. 5 14:00	1.85×10^{-4}	1.25×10^{-4}	1.50×10^{-4}	1.55×10^{-4}	5.55×10^{-4}	1.65×10^{-4}	1.80×10^{-4}	3.95×10^{-5}											
7. 6 11:30									2.25×10^{-4}	3.20×10^{-4}	3.25×10^{-5}	3.35×10^{-4}	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	5.50×10^{-6}	2.55×10^{-5}			
7.11 11:30	6.95×10^{-5}	8.75×10^{-5}	1.05×10^{-4}	1.05×10^{-4}	2.85×10^{-4}	2.15×10^{-4}	9.80×10^{-5}	6.90×10^{-6}	3.50×10^{-4}	4.05×10^{-4}	1.85×10^{-5}	3.10×10^{-4}	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	7.70×10^{-6}	2.40×10^{-5}	5.40×10^{-6}	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$
7.13 10:00	9.90×10^{-5}	1.45×10^{-4}	8.05×10^{-5}	1.45×10^{-4}	2.65×10^{-4}	5.00×10^{-5}	5.75×10^{-5}	6.50×10^{-4}											
7.14 10:30									3.90×10^{-5}	5.70×10^{-6}	2.45×10^{-5}	3.70×10^{-5}	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	5.00×10^{-6}	5.00×10^{-6}			
7.15 10:00	2.05×10^{-4}	1.00×10^{-4}	1.35×10^{-4}	7.10×10^{-5}	1.75×10^{-4}	1.10×10^{-4}	2.05×10^{-4}	9.00×10^{-5}											
7.17 10:00	4.60×10^{-5}	1.65×10^{-4}	4.60×10^{-5}	3.25×10^{-5}	7.20×10^{-5}	7.15×10^{-5}	5.00×10^{-5}	2.95×10^{-4}	2.35×10^{-5}	$< 10^{-5}$	2.80×10^{-5}	2.50×10^{-5}	5.95×10^{-6}	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	5.20×10^{-6}			
7.19 9:30	3.05×10^{-5}	6.20×10^{-5}	4.10×10^{-5}	1.85×10^{-5}	2.45×10^{-5}	4.25×10^{-5}	1.80×10^{-5}	6.80×10^{-5}	1.45×10^{-5}	$< 10^{-5}$	3.05×10^{-5}	2.75×10^{-5}	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$
7.21 10:00	7.95×10^{-6}	4.50×10^{-6}	1.85×10^{-5}	1.75×10^{-5}	2.25×10^{-5}	2.50×10^{-5}	2.55×10^{-5}	7.35×10^{-5}	5.00×10^{-6}	$< 10^{-5}$	2.35×10^{-5}	3.35×10^{-5}							
7.22 9:30													$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$< 10^{-6}$	$< 10^{-5}$			
7.26 10:30	2.85×10^{-5}	1.90×10^{-4}	1.15×10^{-4}	4.55×10^{-5}	5.00×10^{-5}	5.95×10^{-5}	7.15×10^{-5}	1.75×10^{-4}	1.35×10^{-5}	5.00×10^{-6}	2.10×10^{-5}	1.95×10^{-5}	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	5.00×10^{-6}	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	5.00×10^{-6}
7.28 9:30	1.60×10^{-4}	4.30×10^{-4}	4.85×10^{-4}	1.35×10^{-4}	2.75×10^{-4}	1.55×10^{-4}	1.45×10^{-4}	3.25×10^{-4}	3.15×10^{-5}	7.50×10^{-6}	2.55×10^{-5}	1.80×10^{-6}							
7.30 14:30	4.50×10^{-4}	3.60×10^{-4}	4.45×10^{-4}	1.55×10^{-4}	3.35×10^{-4}	1.40×10^{-4}	2.20×10^{-4}	3.35×10^{-4}	5.75×10^{-5}	6.65×10^{-5}	2.50×10^{-5}	1.35×10^{-4}	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$
8. 1 10:00	5.00×10^{-4}	3.35×10^{-4}	1.85×10^{-4}	1.40×10^{-4}	1.65×10^{-4}	1.00×10^{-4}	3.25×10^{-4}	3.40×10^{-4}	4.95×10^{-5}	1.10×10^{-5}	1.55×10^{-5}	2.70×10^{-4}	5.90×10^{-6}	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	5.00×10^{-6}	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$

NaBr を 2500 ppm 程度の濃度で水道水 600 ℓ に溶かし、これに同時にウラニン色素を一応の目安として 10 ppm 程度の濃度で加えたものを原水として作成し、A_I-1 より注入した。A_I-1 注入孔における浸入面から定水面までの距離は 64.2 cm であった。

昭和 47 年 6 月 8 日 9 時 30 分より原水の注入を開始し、これが終了した後に、8,000 ℓ 程度の水道水を注入し、原水ができるだけ早く浸入するようにした。浸入速度は定水頭 64.2 cm で降雨などの影響で速度の変化はあるが、降雨のない時で 5 mm/min (500 ℓ/日) 程度であった。

注入開始後ただちに観測井 a-1 から a-8 までにおいて定期的な採水を行い、採取水に表われるウラニンの色を基準にして、採水する観測井を a-9 から a-19 までに広げていった。

なお注入した原水の密度は 1.002 程度で、いわゆる密度流は起さないと考えられる。また、原水濃度および採取水の濃度は NaBr のうち Br を用いて測定した。Br は 1 価の陰イオンで、土砂にほとんど吸着せず、2500 ppm 程度の濃度では大半が原水の挙動を代表すると考えられる。

d. 試験結果

NaBr 溶液は NaCl 溶液とその化学的特性が良く似ている。しかも Br は地下水中には Cl のようには含まれておらず、 5×10^{-6} M/ℓ 程度の濃度までは、他の化学分析よりも正確にイオンメータで測定できる⁷⁾。また、これより濃度が低い場合には蒸発濃縮したものを原子炉内で放射化すれば ⁸²Br となり、その放射能濃度を分離測定できるわけであるが、蒸発濃縮に時間を要したり、放射能濃度測定器の分離能力、計数効率などの問題から測定に時間を要したりするのでこの方法では多数の試料を取り扱うことはできない。

そこで本試験では a-1 から a-19 までの観測井からの採取水はイオンメータで Br 濃度を測定し、図 II-2-1 に示した A-1 ~ 3 のボーリング孔および周囲の小川、沢などの表流水は放射化分析法で採取水の Br 濃度を測定することにした。

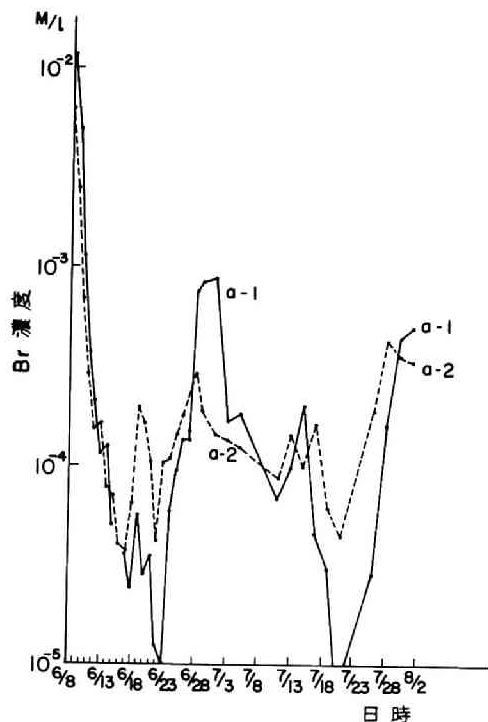
イオンメータで測定した原水の Br 濃度は 2.45×10^{-2} M/ℓ で各観測井における採取水の Br 濃度の代表的なものを表 II-2-5、表 II-2-6 に示した。なお原水注入後半年間を経過しても、観測井以外の採取水からは、放射化分析法によっても Br は検出できなかった。

表 II-2-5、表 II-2-6 中で 10^{-5} と表示しているのは、注入前の地下水に比

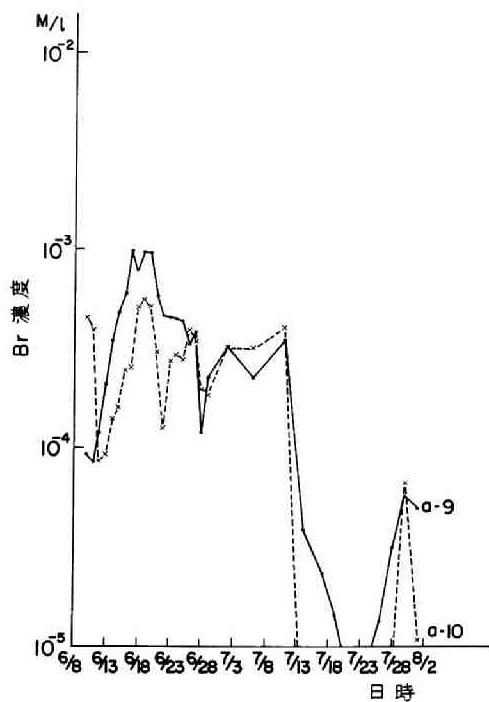
べるとかすかに Br が検出されるが、その濃度が 10^{-5} M/l 以下、 10^{-6} M/l 以上のものを示す。この観測井群の規模（半径 10 m の円）では、 10^{-5} M/l 以下の濃度は、原水全体の動きを知るのに影響を与えないと考えられるので、ここでは簡便のため、厳密な濃度は測定しなかった。

表Ⅱ-2-5、表Ⅱ-2-6 をわかりやすくするため、これらの値をたて軸に対数目盛で Br 濃度、横軸に普通の日盛で時間をとって、観測井における濃度変化の一部を図Ⅱ-2-10、図Ⅱ-2-11、図Ⅱ-2-12 に示した。

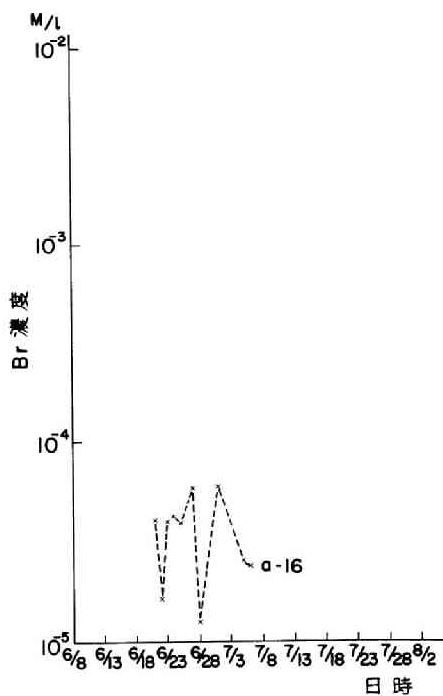
a-1 から a-8 までの第 1 円に、いつまでもかなりの濃度の Br が検出され、



図Ⅱ-2-10 a-1, a-2におけるBr濃度変化



図Ⅱ-2-11 a-9, a-10におけるBr濃度変化



図Ⅱ-2-12 a-16におけるBr濃度変化

いわゆる原水の中心附近の移動速度は測定できなかった。そこで大まかではあるが、図Ⅱ-2-12のa-16を用いて、移動速度の概算を行った。図Ⅱ-2-12においてa-16の濃度曲線のピークの位置は明らかではないが、一応6月27日をピークとしてみると、注入開始日よりの経過日数が19日で、その間の水平距離は約5m、したがって移動速度は $5\text{m}/19\text{日} \approx 25\text{cm}/\text{日}$ 程度と見積れる。ただし、これは図Ⅱ-2-9にも示したように、地層は十分に水を保持し、かつ、注入孔からは連続的に井戸水を注入し、できるだけ早く原水が浸透移動するようにした結果求められた移動速度で、実際の移動速度はこれよりはるかに小さいものと考えられる。たとえば、本章第2節の土質試験の結果を用いて移動速度の計算を行う。地層の透水係数は $10^{-3}\text{cm}/\text{sec}$ から $10^{-4}\text{cm}/\text{sec}$ であるので、一番大きな値 $10^{-3}\text{cm}/\text{sec}$ を透水係数として用い、地層の傾斜は $2^{\circ} \sim 3^{\circ}$ であるので、これも一番大きな値 3° を動水勾配として用いると、空隙率は0.40であるので、一次元の流れと近似してDarcyの法則⁶⁾を用いると約6.5cm/日と計算できる。しかもこの値は透水係数、動水勾配を一番大きな値を用いたので、実際の地下水の移動速度はさらに小さなものになると考えられる。

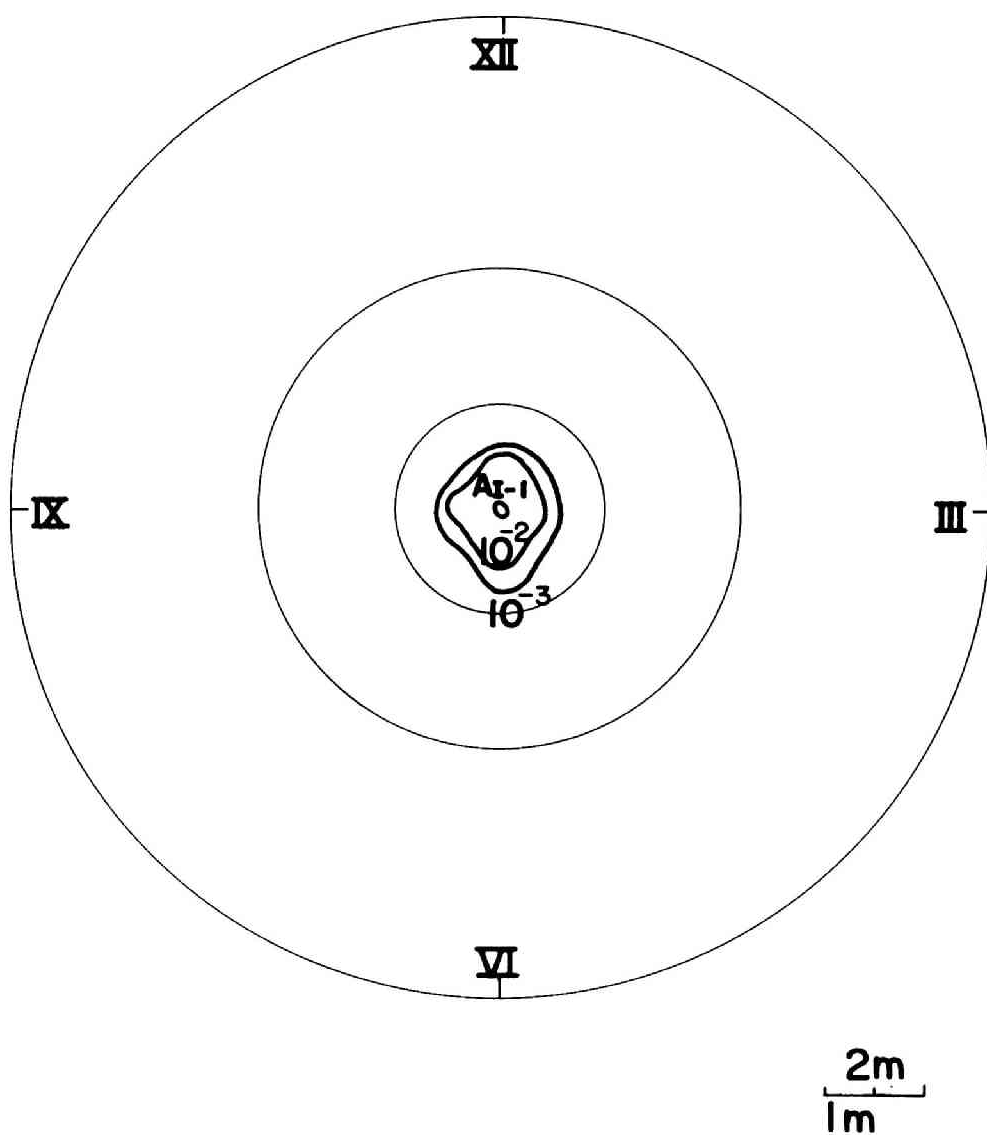
つぎに、図Ⅱ-2-10～図Ⅱ-2-12では原水全体の挙動を把握できないので、表Ⅱ-2-5、表Ⅱ-2-6および図Ⅱ-2-10～図Ⅱ-2-12を参考にして大まかな水平方向の等濃度曲線を描いた。等濃度曲線の一部を図Ⅱ-2-13～図Ⅱ-2-17に示した。

図Ⅱ-2-13は注入開始後7時間半の原水の状態を示したもので、等濃度曲線に書き込んだ数字はBr濃度をM/lで示したものである。注入開始後7時間半で注入された原水は約160lであり、図Ⅱ-2-13より、原水のお大半は半径1mの円内にあり、地下水との接触面いわゆるフロントでの濃度勾配が急であることが読みとれる。

図Ⅱ-2-14は注入開始後24時間半経過したもので、この間に注入された原水は約510lである。この場合には、図Ⅱ-2-13の時よりもはっきりとフロントの濃度勾配が読みとれる。そこで濃度勾配が一番ゆるやかな図中の矢印の方向について濃度勾配を求めてみる。矢印と等濃度曲線とが交わる点の距離を注入孔の外側から測定して図Ⅱ-2-18にBr濃度と共にプロットした。この結果、Br濃度と距離の関係は片対数紙上で直線となり、この直線よりフロントの濃度勾配を示す実験式として

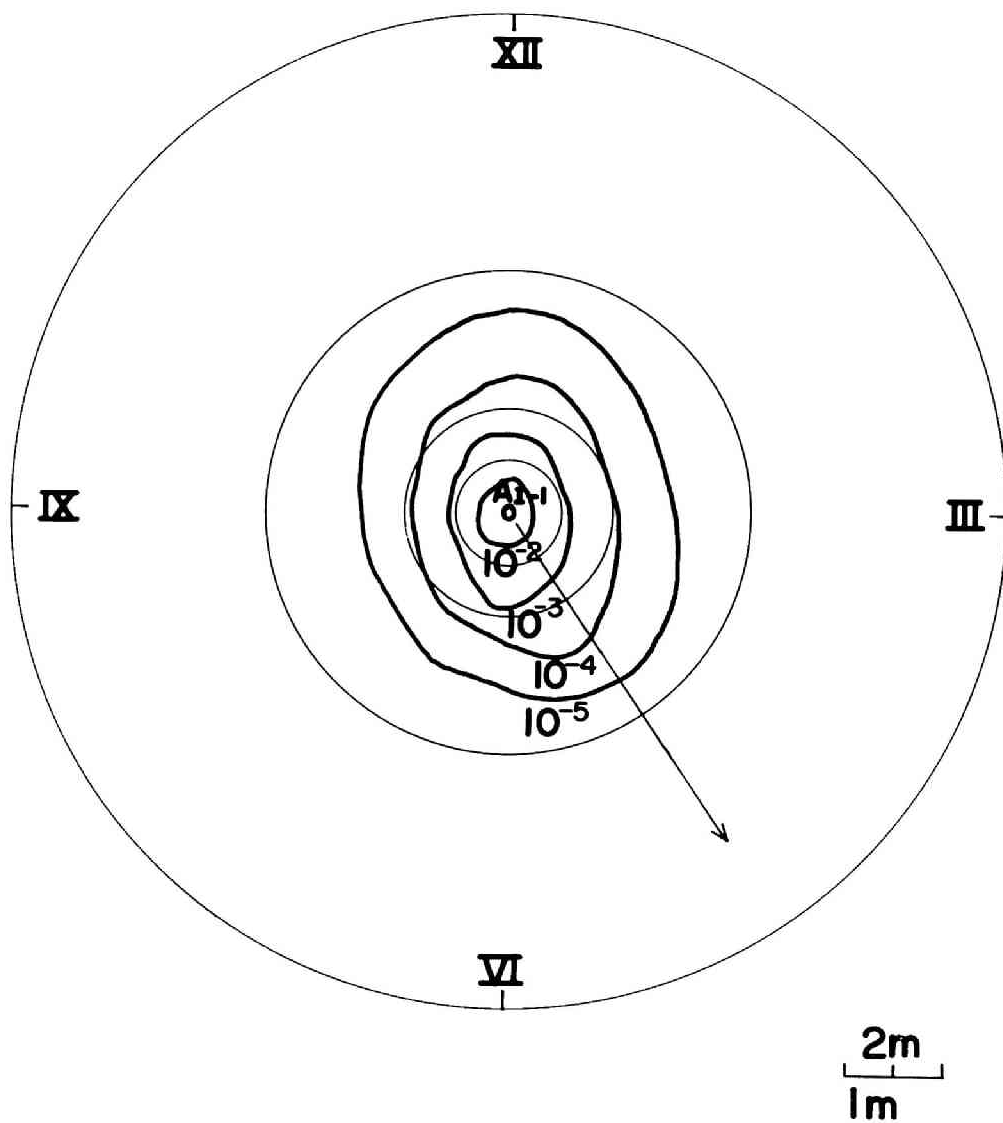
$$y = E \cdot 10^{-0.77x} \quad (\text{Ⅱ-2-2})$$

を得た。(Ⅱ-2-2)式で、yは濃度Eの点から水平距離x m離れた地点での濃度



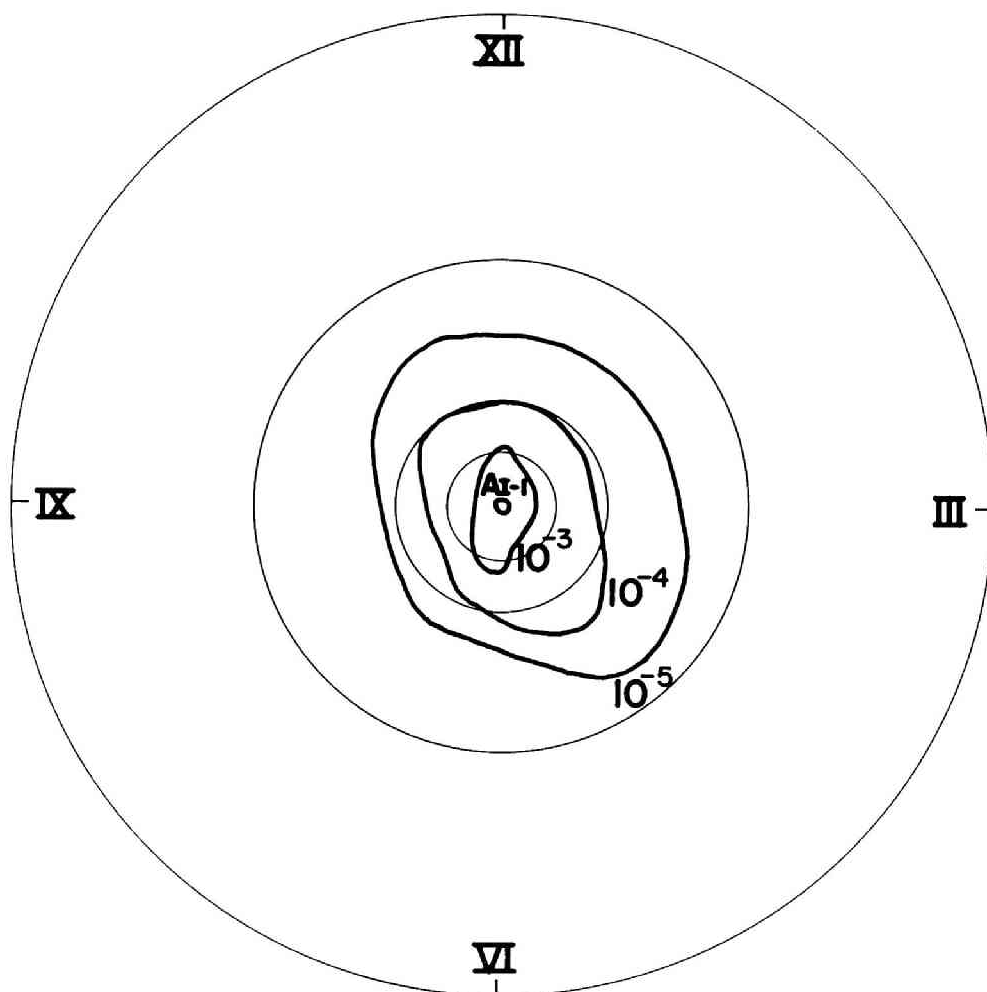
S.47.6.8 Br 濃度 (M/l)
17:00

図 II - 2 - 13 等濃度曲線 (その 1)



S.47.6.9 Br 濃度 (M/L)
10:00

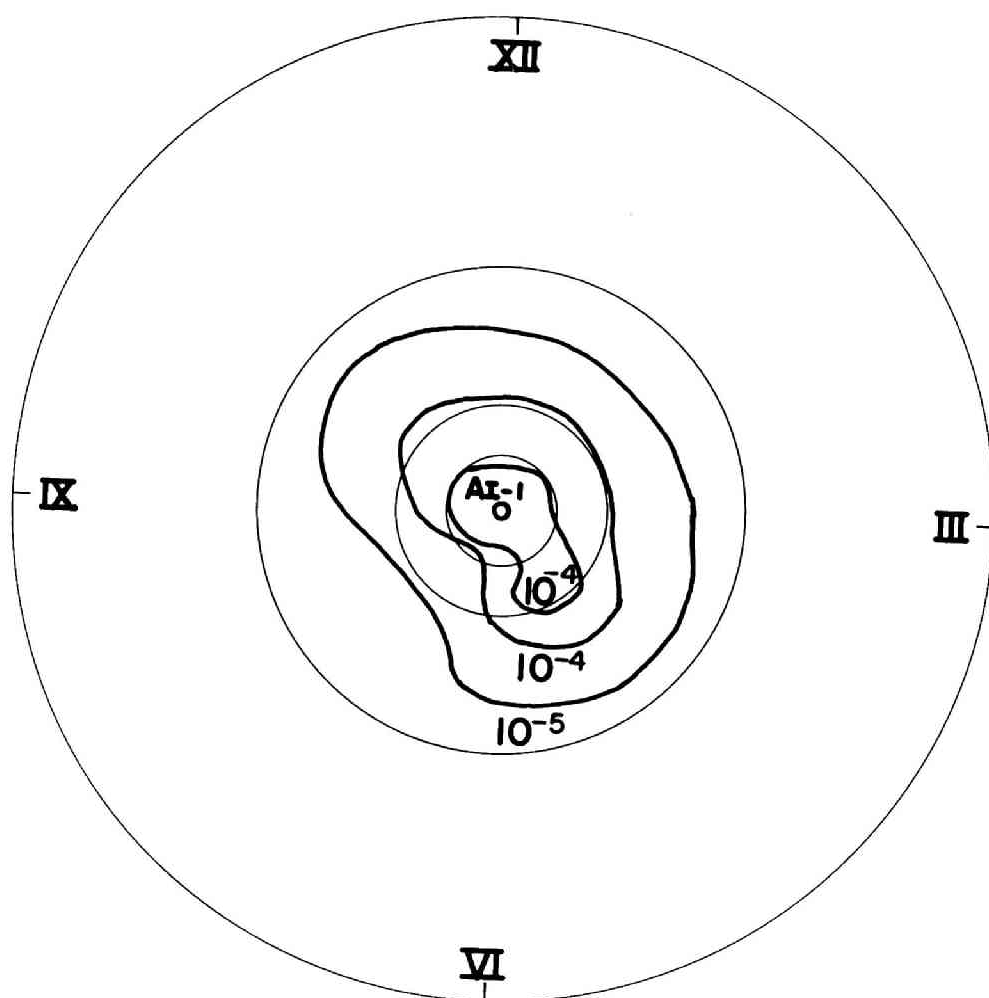
図 II - 2 - 14 等濃度曲線 (その 2)



S.47.6.10 Br 濃度 (M/L)
18:00

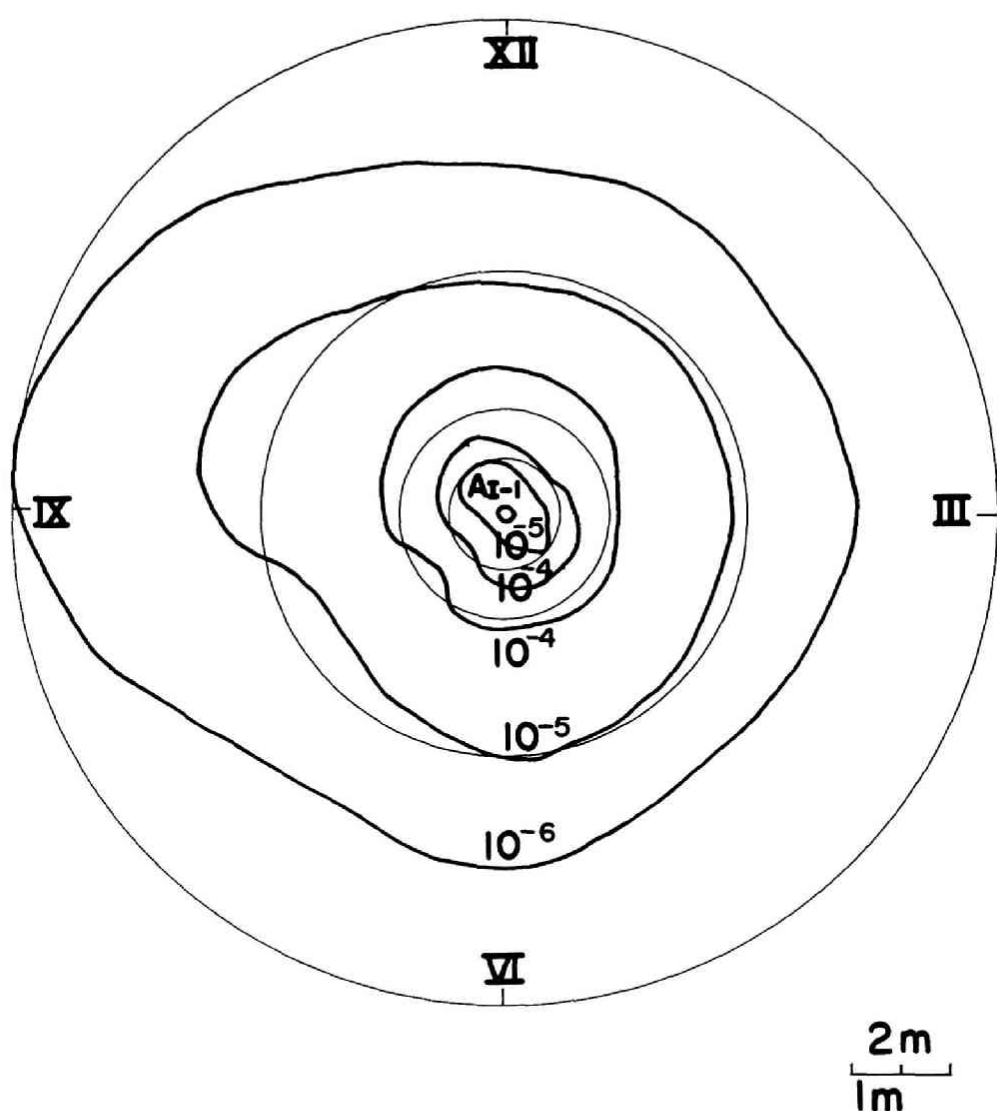
2m
1m

図 II - 2 - 15 等濃度曲線 (その 3)



S.47.6.12 Br 濃度 (M/l)
11:30

図 II - 2 - 16 等濃度曲線 (その 4)

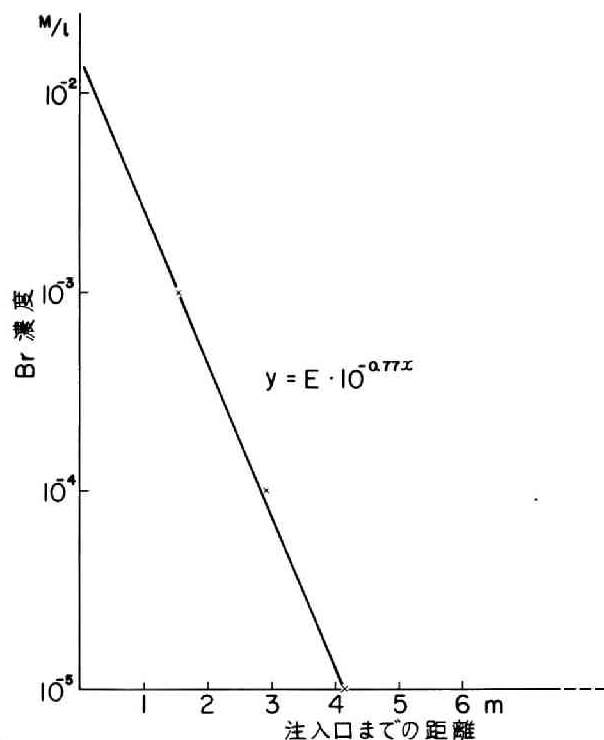


S.47.6.23 Br濃度 (M/l)
13:30

図 II - 2 - 17 等濃度曲線 (その 5)

である。なお、(Ⅱ-2-2)における x の係数0.77は一応の目安で、地層の含水率によって変化するが、かりに(Ⅱ-2-2)式で概算すると、原水のフロントでの濃度勾配は水平距離10mにつき、濃度比が $10^{-7.7}$ も減少していることがわかる。したがって第1砂層に注入した原水は地下水中にはほとんど分散せず、円柱状で第1砂層内に存在することが推測できる。

図Ⅱ-2-15～図Ⅱ-2-17は注入終了後の原水の挙動を示しており、注入孔より連続的に注入した8000ℓの水道水や、降雨の浸入と蒸発散等の影響により、原水濃度が低下し、かつ等濃度曲線の輪が広がっていく様子が見える。図Ⅱ-2-17は原水注入開始後15日を経過したものであるが、注入された原水はⅩ時側に等濃度曲線がやや突き出したように見えるものの、全体としては移動した様子が見られず、等濃度曲線からは原水が第1砂層を移動する速度を求めることができなかった。



図Ⅱ-2-18 注入原水のフロントでの濃度勾配(注入開始後1日)

第3節 分配係数値の測定

地中の浸入した原水の挙動がわかれば、原水中に含まれる放射性核種の挙動は、原水の挙動のうち時間だけを K_f 倍してやれば求まる⁵⁾。ただし

$$K_f = 1 + \frac{1-f}{f} \cdot \rho \cdot K_d \quad (\text{Ⅱ-2-1})$$

であり、(Ⅱ-2-1)式中の f は空隙率、 ρ は密度ですでに本章第2節の実験で $f = 0.40$ 、 $\rho = 2.65 \text{ g/ml}$ を得た。

そこで本節においては(Ⅱ-2-1)式中で残された分配係数 K_d を実験で求める

ことにした。

放射性核種としては、一般に原子力発電所、核燃料再処理などの原子力産業からの放射性廃棄物の性状からみて⁸⁾、人体への影響、放射性核種自身の半減期等から、環境安全上危険度の高い放射性核種として、 ^{60}Co 、 ^{90}Sr が考えられる。そこで実験には ^{60}Co と、 ^{90}Sr よりも取り扱いが容易な ^{85}Sr とを用いた。

3-1 模擬地下水の作成

放射性核種の分配係数は地下水中に主として含まれる陽イオンすなわち、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Na^+ などによって決定される。したがって、放射性核種の分配係数を求めるのは、現地で採取した地下水と帯水層を構成する土砂とを実験室に持ち帰り実測する方法が確実である。しかし、一般に原子力施設敷地と分配係数を測定することが出来る実験室は非常に距離的に離れていることが多い。この場合に、土砂は少量（1回の測定で数g）で良いため簡単に運べるが、地下水は大量（1回の測定で数ℓ）に必要であり、容器の破損の恐れ、水質の変化等の問題も加わって運搬が非常に困難である。ところが、放射性核種の地中移動の予測という作業には種々の大まかな要素（例えば原水自体の挙動の把握等）が含まれているため、分配係数だけを厳密に測定する必要はないと考えられる。そこで現地で地下水の総硬度を測定しておいてこれをもとに実験室で模擬地下水を作成し分配係数を測定する方法について検討した。

^{60}Co および ^{85}Sr はともに2価の放射性陽イオンであり、第I編第2章の実験結果から、これらの分配係数を支配するのは Ca^{2+} と Mg^{2+} とである。一方、第I編第3章において述べたように、 Ca^{2+} と Mg^{2+} とが共存して ^{60}Co や ^{85}Sr の分配におよぼす影響を論じる時には Mg^{2+} 濃度を Ca^{2+} 濃度に換算して、 Ca^{2+} のみの影響として取り扱うことができる¹⁴⁾。すなわち、

$$C_{\text{XT}} = C_{\text{Ca}} + (K_{\text{Ca-Mg}})^{-1} \cdot C_{\text{Mg}} \quad (\text{II-2-3})$$

ただし、 C_{XT} ：液相中の Ca^{2+} と Mg^{2+} とを Ca^{2+} のみに置き換えた時のイオン数
(meq/ml)

C_{Ca} ：液相中の Ca^{2+} のイオン数 (meq/ml)

C_{Mg} ：液相中の Mg^{2+} のイオン数 (meq/ml)

$K_{\text{Ca-Mg}}$ ：交換吸着体（第1砂層の砂）に対する Ca^{2+} と Mg^{2+} との間の平衡定数⁹⁾

で示された Ca^{2+} 濃度 C_T (meq/ml) に対応する ^{60}Co や ^{85}Sr の分配係数値が求める値であることがわかる。いま (II-2-3) 式に示された平衡定数について検討すると、 Ca^{2+} と Mg^{2+} とはともに 2 価のアルカリ土族に属する陽イオンで、その化学的挙動は非常に良く似ているが、水和イオン半径が Ca^{2+} の方が小さい (Mg^{2+} , Ca^{2+} の水和イオン半径はそれぞれ 4.28 \AA , $3.64 \text{ \AA}^{10)}$ である) ため、 Ca^{2+} の方が少し良く吸着し、この結果平衡定数 $K_{\text{Ca-Mg}}$ の値は 1 よりも大きくなる。ただし

$$K_{\text{Ca-Mg}} = \frac{q_{\text{Ca}} \cdot C_{\text{Mg}}}{q_{\text{Mg}} \cdot C_{\text{Ca}}} \quad (\text{II-2-4})$$

であり、 q_{Ca} , q_{Mg} は Ca^{2+} , Mg^{2+} の交換吸着体への吸着数 (meq/g) である。またこの値は第 I 編第 3 章において、グリーンサンド、KUR 砂 (京都大学原子炉実験所構内地下帯水層で採取した砂) について実測したが最大値を示したグリーンサンドの場合でも 2.0 程度 (第 1 帯水砂層で採取した砂について実測した結果は 1.5 であった) である。したがって総硬度 (Ca^{2+} と Mg^{2+} の全イオン数) を C_T (meq/ml) とすると

$$C_{\text{XT}} = C_{\text{Ca}} + (K_{\text{Ca-Mg}})^{-1} \cdot C_{\text{Mg}} < C_{\text{Ca}} + C_{\text{Mg}} = C_T \quad (\text{II-2-5})$$

となり、総硬度の値の方が、 Ca^{2+} のみに換算した値よりも大きい。また一般に C_{Ca} と C_{Mg} との値は同じ程度であり、 $K_{\text{Ca-Mg}}$ を大きく見込んで 2.0 としても $C_{\text{Ca}} = C_{\text{Mg}}$ とすると、

$$C_{\text{XT}} = C_{\text{Ca}} + \frac{1}{2} C_{\text{Ca}} = \frac{3}{2} C_{\text{Ca}} = \frac{3}{4} C_T \quad (\text{II-2-6})$$

となる。

放射性核種の分配係数は液相中に存在する非放射性陽イオンの数が大きくなればなるほど小さくなる^{11) 12)}。したがって、現地で容易に測定できる総硬度を測定しておいて、総硬度をそっくり Ca^{2+} で供給した模擬水を作成し、 ^{60}Co や ^{85}Sr の分配係数を測定すると、(II-2-5) 式により明らかに、実際の分配係数よりも小さな値を得ることになる。しかし、放射性核種の分配係数を小さく見積もるということは、それだけ放射性核種が土砂に分配せず早く地中を移動すると予測することになり、放射性核種の地中移動に関する調査という立場からみれば安全側である。また (II-2-6) 式からも明らかなように、(II-2-4) 式のような濃度換算を行わずに総硬度

がすべて Ca^{2+} であると大きく見込み過ぎても、平衡定数を大きく見込んで 2.0 としても、たかだか 3 割程度大きく見込み過ぎる程度である。したがって、現地で総硬度だけを測定して、実験室で総硬度をすべて Ca^{2+} で置き換えた模擬地下水を作成して、 ^{60}Co や ^{85}Sr の分配係数を測定するのは、放射性核種の地中移動を予測する立場からみると有力な方法であることがわかった。

したがって本調査研究においてもこの方法で模擬地下水を作成することにした。

A ブロック A-1 ボーリング孔より地下水を採取し、A ブロック近くの某原子力施設の化学実験室において、採取した地下水の一部を用いて EDTA 法で総硬度の測定を行った¹³⁾。この結果、地下水の総硬度として 60 ppm (CaCO_3 として)を得た。

そこで筆者の所属する京都大学原子炉実験所の RI 使用施設において以下の実験を行った。

現地の地下水の総硬度 60 ppm を当量単位に換算すると、 $60 \text{ ppm} \div (50 \text{ ppm/meq/l}) = 1.2 \text{ meq/l} = 1.2 \times 10^{-3} \text{ meq/ml}$ となる。一方、 Ca^{2+} についてみると $1 \times 10^{-3} \text{ meq/ml} = 20 \text{ ppm}$ であるので、総硬度をすべて Ca^{2+} で供給するためには、24 ppm (Ca^{2+} として)の Ca^{2+} 溶液を作成する必要がある。硝酸カルシウムを純水に溶かして 24 ppm (Ca^{2+} として)硝酸カルシウム溶液を作成して模擬地下水を作成し、次項 3-2 の実験を行った。

3-2 分配係数の測定および結果

図 II-2-1 に示した AT-1, AT-2 のトレンチ第 I 砂層および表土層より採取した試料土および模擬地下水を用いて分配係数の測定を行った。

第 I 編第 2 章 2-2-2 で述べたのと同様の方法で、試料土のカルシウム化を行った。

模擬地下水に ^{60}Co および ^{85}Sr をそれぞれ $10^{-2} \mu\text{Ci/ml}$ 程度の濃度になるように、別々に添加して 2 種の原水を作成した。なお、使用した ^{60}Co および ^{85}Sr の化学特性は第 I 編第 2 章表 I-2-1 に示したとおりである。

カルシウム化した試料 3 g ずつと 2 種の原水 150 ml ずつとを 24 時間ビーカー内で接触させた。この時の実験方法は第 I 編第 2 章 2-2-3 で述べたのと同じ方法である。

24 時間経過後に上澄液をろ紙(東洋ろ紙 No. 4)を用いて、ろ過し、ろ液の放射能濃度と Ca^{2+} 濃度とを測定した。放射能濃度は NaI シンチレーションカウンタを用いて

測定し、 Ca^{2+} 濃度はEDTA法¹³⁾で測定した。24時間経過後のろ紙と原水との間の Ca^{2+} 濃度の変化はみられなかった。原水とろ紙との間の放射能濃度の変化より、試料に分配された ^{60}Co または ^{85}Sr の分配量 $q_A(\mu\text{Ci}/\text{mg})$ を求め、ろ液中の ^{60}Co または ^{85}Sr の放射能濃度 $C_A(\mu\text{Ci}/\text{ml})$ より(Ⅱ-2-1)式中の分配係数 $K_d(\text{ml}/\text{g})$

$$K_d = q_A / C_A \quad (\text{Ⅱ-2-7})$$

として求めた。

得られた分配係数値を表Ⅱ-2-7に示した。表Ⅱ-2-7には試料の密度、イオン交換容量(第Ⅰ編第2章3-2-1に示した酢酸アンモニウム法により測定した)および現地の地下水(本実験では総硬度による簡便法がどの程度、現地で採取した地下水を用いる方法と一致するかをみるため、現地で採取した地下水を京都大学原子炉実験所まで輸送した。地下水水質の分析結果を表Ⅱ-2-8に示す)を用いて実測した分配係数値とを併せて示した。

表Ⅱ-2-7 ^{60}Co および ^{85}Sr の分配係数値の測定結果

試料名	密度 g/ml	交換容量 meq/g	放射性 核種名	模擬地下水を用いた分配係数 ml/g	現地の地下水を用いた分配係数 ml/g
AT-1 粘土まじり細砂	2.64	0.12	^{60}Co	195	213
			^{85}Sr	50	52
AT-1 粘土まじり中砂	2.62	0.09	^{60}Co	163	188
			^{85}Sr	31	34
AT-2 粘土まじり細砂	2.60	0.13	^{60}Co	191	205
			^{85}Sr	57	65
AT-2 粘土まじり中砂	2.65	0.11	^{60}Co	152	169
			^{85}Sr	35	41
AT-1 表土	2.59	0.15	^{60}Co	169	180
			^{85}Sr	31	38

表Ⅱ-2-7によれば、模擬地下水を用いて測定した ^{60}Co および ^{85}Sr の分配係数値は放射性核種ごとに同じ値を示したので、各々の最小値から ^{60}Co の分配係数値を $150\text{ml}/\text{g}$ 、 ^{85}Sr の分配係数値を $30\text{ml}/\text{g}$ とすることにした。また、これらの分配係数値を実際に現地で採取した地下水を使用して測定した分配係数値と比較すると、いずれの場合も前者の方が1割程度小さくて、前述したように模擬地下水を使用する

本方法は、有効であることがわかった。

表Ⅱ－２－８ 某原子力施設内の地下水の分析結果

酸 消 費 量	pH 6.3	有 機 リ ン	0.00 ppm
濁 り	9	銅	0.1 ppm
硬 度	60 ppm	カ リ ウ ム	3.2 ppm
蒸 発 残 留 物	130 ppm	ナ ト リ ウ ム	30.4 ppm
塩 素 イ オ ン	62 ppm	カ ル シ ウ ム	10.8 ppm
アンモニア性窒素	0.13 ppm	マ グ ネ シ ウ ム	8.0 ppm
亜 硝 酸 性 窒 素	0.00 ppm	鉛	0.0 ppm
硝 酸 性 窒 素	2.10 ppm	亜 鉛	0.03 ppm
ヒ 素	0.00 ppm	鉄	0.1 ppm
水 銀	0.00 ppm	ク ロ ム	0.0 ppm
マ ン ガ ン	0.01 ppm		

第４節 放射性核種の地中における挙動の推定

４－１ 注入原水の移動速度をもとにした⁶⁰Coおよび⁹⁰Srの挙動の推定

本章第２節の野外実験の結果、図Ⅱ－２－１２より注入原水の移動速度の概算値として25cm/日を得た。

一方、本章第３節の分配係数の測定の結果、⁶⁰Coの分配係数値として150ml/g、⁹⁰Srの分配係数値として30ml/gを得たので、(Ⅱ－２－１)式を用いて⁶⁰Coおよび⁹⁰Srの遅れ係数 K_f ⁵⁾の計算を行う。ただし、本章２節の野外実験の結果にもとづき、式中の空隙率 f を0.40、第１砂層を構成する砂の密度 ρ を2.65g/mlとした。

計算の結果、⁶⁰Coの K_f 値として600、⁹⁰Srの K_f 値として120を得た。

以上の結果、⁶⁰Coは第１砂層中を $25 \div 600 \div 0.042$ cm/日、⁹⁰Srは $25 \div 120 \div 0.21$ cm/日で移動すると計算できる。⁶⁰Co、⁹⁰Srはそれぞれ半減期5.2年、28年で自己崩壊するので、第１砂層を移動中に地下水によって希釈されなくてもその濃度は減少する。そこで移動中には地下水で希釈されないものとして、移動前の原水中濃度を C_0 、距離 x m移動後の濃度を C として、 C/C_0 の計算を行う。計算結果は表Ⅱ－２－９に示した。

図Ⅱ－２－１によればAⅠ-1地点よりAブロック境界までの最短距離はⅩ時方向の

約 250 m であるので、表
Ⅱ－2－9 によって、A_I
－1 地点より A ブロック
最短境界に到るに要する
時間および到達時の濃度
比 C/Co を計算すると、

表Ⅱ－2－9 x_m移動後の ⁶⁰Co および ⁹⁰Sr の濃度減少

放射性核種	半減期	K _f 値	x _m 移動するの に要する年数	x _m 移動後の C/Co
⁶⁰ Co	5.2年	600	6.52 x	$10^{-0.877 x}$
⁹⁰ Sr	28 年	120	1.30 x	$10^{-0.014 x}$

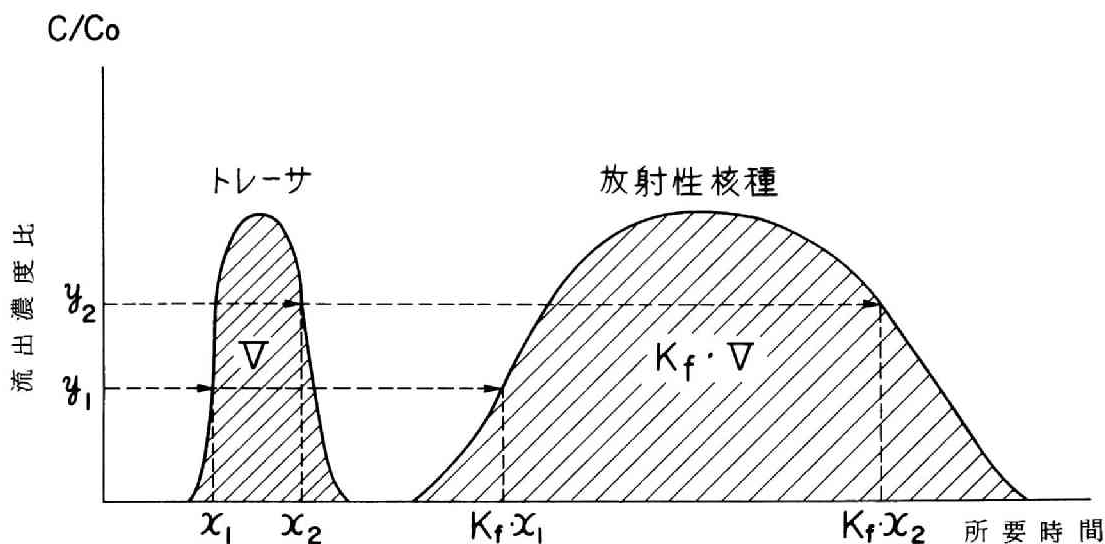
⁶⁰Co の場合は 1630 年要し、 $C/Co \doteq 10^{-94}$ 、⁹⁰Sr の場合は 325 年要し、 $C/Co \doteq 10^{-3.5}$ となる。

⁶⁰Co の場合は移動に多くの年数を要し、かつ ⁹⁰Sr に比して半減期が短かいため A ブロック境界到達時には 94 桁もの減衰が予測され、⁹⁰Sr に比べて非常に安全であると考えられる。

⁹⁰Sr の場合は、わずかに 3 桁程度の減衰しかみられないが、これは、原水移動速度を本章第 2 節で述べたように過大に見積もったためで、実際に第 1 砂層を移動する時にはもっと大きな減衰が見込める（表Ⅱ－2－9 の結果からも明らかなように原水移動速度が仮りに $1/2$ であれば、減衰の桁数は 2 倍になる）。したがって ⁹⁰Sr の挙動を推定するにあたっては次項で述べる量的な挙動の推定を併せて考慮しなければならない。

4－2 等濃度曲線をもとにした ⁹⁰Sr の量的な挙動の推定

放射性核種を含んだ水が第 1 砂層に浸入した場合の放射性核種の挙動は、あらかじめ吸着しないトレーサを添加した水を注入し、その挙動を知れば、本章第 3 節で述べたように井上の理論⁵⁾により K_f 値を用いてトレーサを添加した水の挙動のうち時間だけを K_f 倍してやれば推定できる。これを図示すると図Ⅱ－2－19 のようになる。図Ⅱ－2－19 はある地点より、トレーサを添加した水を注入して、これをある観測点で観測した場合のトレーサの流出曲線を示したもので、横軸が所要時間、たて軸が流出濃度比である。したがってこの観測点における放射性核種の流出曲線は、図Ⅱ－2－19 に示すようにトレーサ濃度比 y₁, y₂ に対応する時間 x₁, x₂ をそれぞれ K_f・x₁, K_f・x₂ と引き伸したものが、放射性核種の流出曲線となる。ここで図Ⅱ－2－19 の斜線部分の面積について注目してみる。この観測点における地下水流速は時間によって変化しないとすると、斜線部分の面積は、トレーサの流出量を示す。したがってトレーサの流出量を V とすると、放射性核種の流出量は当然 K_f・V となる。したがって



図Ⅱ－２－１９ K_f 値の意味

図Ⅱ－２－１９のような流出曲線を得るためには、放射性核種を含んだ水は、トレーサを含んだ水の K_f 倍の量を K_f 倍の時間をかけて同じ注入速度で注入しなければならない。

以上の結果を応用すると、ある投入点よりトレーサを添加した水を一定速度で X 投入して、時間が T 経過した時、ある濃度比の等濃度曲線が求められたとすると、放射性核種を含んだ水を $K_f \cdot X$ も投入しても、時間 $K_f \cdot T$ 後にやっと同じ等濃度曲線になることがわかる。

この方法を用いて図Ⅱ－２－１７について考察する。図Ⅱ－２－１７は注入開始後 15 日経過した時の原水の挙動を示す等濃度曲線であるが、核種として ^{90}Sr を考えると、 ^{90}Sr の K_f 値は表Ⅱ－２－９に示すように 120 で、注入量は $600 \text{ l} \times 120 = 70 \text{ m}^3$ 、注入開始後の日数は $15 \text{ 日} \times 120 = 5 \text{ 年}$ と計算できる。したがって換言すれば、 A_1-1 から ^{90}Sr が混入した 70 m^3 もの水が地中に浸入していても、浸入開始後 5 年を経て、 ^{90}Sr の崩壊を無視して、放射能濃度比 $C/Co = 10^{-6} \text{ M/l} / 2.45 \times 10^{-2} \text{ M/l} = 4 \times 10^{-5}$ に減少した部分さえも半径 10m の円の中（図Ⅱ－２－７の第 4 円）にあり、これより濃度の高い部分（注入された ^{90}Sr の大部分）はすべて、この等濃度曲線の内側にあることがわかった。

第5節 結論

本章では、我国の某原子力施設の陸地保管予定地Aブロックについて実際に野外実験を行い、第1砂層に浸入した水の挙動を調査し、これをもとに第1砂層での放射性核種の挙動を推定した。

Aブロックは泥岩基盤の上に段丘的に砂・粘土互層が堆積して形成されており、周囲を小河川および海で取り囲まれており、降雨のみが浅層地下水の供給源であると考えられた。そこで図Ⅱ-2-1のA_I-1を中心として観測井群を設け、A_I-1よりトレーサとしてNaBrを添加した原水を第1砂層に浸入させ、その挙動を観測井群からの採水によって観察した。この結果、a-16観測井を用い原水の移動速度として約25cm/日を概算した(この値は非常に大きく見積ったもので、地層の傾斜を3°、透水係数を 10^{-8} cm/secと大きく仮定し、一次元の流れと近似しても約6.5cm/日としかない)。また、図Ⅱ-2-13~Ⅱ-2-17で示したように等濃度曲線を描いて、注入した原水の平面的(二次元的)な挙動を把握した。

一方、放射性核種の地中での移動速度の遅れを示す K_f 値⁵⁾の重要因子である分配係数の測定にあたっては、第I編第3章で得られた結果を応用して、現地では地下水の総硬度のみを測定しておき、これをもとに Ca^{2+} のみで作成した模擬地下水を用いて分配係数を測定する方法を提案した。⁶⁰Coおよび⁸⁵Srについてこの方法で分配係数を測定し、実際の地下水を用いて得られた分配係数値と比較した結果、実用可能な程度一致することが確かめられ、運搬に不便な地下水を用いなくても模擬地下水で代用できることを知った。またこの結果Aブロックにおいては⁶⁰Coの分配係数値として150ml/g、⁸⁵Sr(⁹⁰Srについても同じ)の分配係数値として30ml/gを用いることにした。

最後に野外実験の結果得られた浸入原水の調査結果をもとに、放射性核種の第1砂層中での挙動を推定した。まず、a-16観測井より得た約25cm/日をもとに⁶⁰Coおよび⁹⁰Srが第1砂層を移動する速度を求めて、原水注入点A_I-1よりAブロック最短境界までの距離250mを⁶⁰Coおよび⁹⁰Srが移動した時の自然崩壊による濃度減少を計算した。この結果、⁶⁰Coは250m移動すれば注入時点よりも濃度が94桁も減少し、⁹⁰Srは約3桁しか減少しないことを知った。つぎに、原水の等濃度曲線をもとに、⁹⁰Srが混入した水がA_I-1地点より第1砂層に浸入した場合の⁹⁰Srの挙動を量的に把握した結果、⁹⁰Srが混入した70m³の水が第1砂層に浸入しても、浸入開始後5年を経ても、浸入した⁹⁰Srの大部分は半径10mの円の中にあることを知った。なお、

この結果を工学的見地から検討すれば、かりに ^{90}Sr が第1砂層に混入しても、半径数mの円周を地中壁のようなもので囲い、上部から降雨が浸入しないように覆いのようなものを設けてやれば、 ^{90}Sr の移動を防ぐことができるし、 ^{90}Sr が混入した水の量が少ない場合には、第1砂層のわずかの砂を取り除くことによって浸入した ^{90}Sr を回収できることがわかる。

第Ⅱ編第2章の参考文献

- 1) 井上頼輝；“放射性廃棄物の地中処分に關する基礎的研究”，京都大学学位論文，100(1967)。
- 2) 井上頼輝，森沢真輔；日本原子力学会誌，**14**，552(1972)。
- 3) 井上頼輝，森沢真輔；日本原子力学会誌，**14**，652(1972)。
- 4) 井上頼輝，森沢真輔；日本原子力学会誌，**15**，126(1973)。
- 5) Inoue, Y and W.J. Kaufman；Health Phys., **9**，705(1963)。
- 6) 土木学会編；“水理公式集昭和46年度改訂版”，366(1972)。
- 7) Ciaccio, L.L.；“Water and Water Pollution Handbook, Volume 4” Marcel Dekker, Inc., New York, 1765(1973)。
- 8) 原子力安全研究協会編；“固体廃棄物処理処分委員会中間報告書”，原安協報告-15(1969)。
- 9) 本田雅健；“イオン交換”，南江堂，26(1962)。
- 10) 木曾義之；“ゾーン電気泳動”，南江堂，38(1971)。
- 11) 筒井天尊，西牧研壯；保健物理，**10**，79(1975)。
- 12) 筒井天尊，西牧研壯；保健物理，**10**，203(1975)。
- 13) 三宅泰雄，北野 康；“水質化学分析法”，地人書館，163(1968)。
- 14) 筒井天尊，西牧研壯；“放射性核種の土砂への分配に關する基礎的研究”，KURRI-TR-151(1977)。

第3章 放射性廃棄物の陸地保管を目的としたセメント固化に関する研究

第1節 はしがき

原子力利用施設からは大量の放射性廃棄物が生じるが、これらの廃棄物の処分法として陸地保管を取り上げ、陸地保管を目的とした放射性廃棄物の固化法について研究を行った。

放射性廃棄物を陸地保管するにあたっては、固化処理を行う方法と、固化せず容器に入れそのまま保管する方法が考えられるが、後者は最終処分の方法すなわち海洋処分か陸地処分かということが未定の段階でいわゆる中間処理のまま一時的に保管しているもので、一般には前者のように、廃棄物の飛散防止等安全確保のため固化処理を行うことが必要である。

放射性廃棄物の固化の方法としては、セメント固化、アスファルト固化、ガラス固化、プラスチック固化等、種々考えられるが本研究では安価で、かつ取り扱いが最も簡単と考えられるセメント固化を取り上げた¹⁾。

固化処理を行った固化体に対しては、固化体の有する圧縮強度を主とした物理的特性に関する研究と、固化体からの放射性核種の浸出を主とした化学的特性に関する研究とが盛んに行われてきた。前者についてはセメントの種類や、固化を行うときの水、セメント、固化対象物の配合重量比を変化させ、でき上がった固化体の圧縮強度を調べる実験が行われてきた^{2) 3) 4) 5)}。また、後者については¹³⁷Cs、⁶⁰Coなどに関する浸出実験^{6) 7)}、高圧下における浸出実験^{8) 9)}などを中心に研究が進められてきた^{10) 11)}。

ところで、一般にセメント固化体を作成する場合、この中へ入れる固化対象物（放射性廃棄物）の量を少なくすれば当然、固化体の圧縮強度は増し、固化体からの放射性核種の浸出率は低下する¹⁰⁾が、でき上がった固化体の中で占める固化対象物の割合（容積比）は小さくなるのも当然である。いま最終処分法として陸地保管と海洋処分を考えた場合、両者の決定的な相違は、後者が海洋の大きさから考えて、固化体の中で固化対象物が占める割合はほとんど考慮せず、海中での水圧で固化体が破損しないようにできるだけ圧縮強度を増し、固化体からの放射性核種の溶出率を低下させる方法を考えれば良いのに比べて、前者の場合にはわが国のように国土の狭い国では固化体中で占める固化対象物の割合をできるだけ大きくし、かつある程度要

求される圧縮強度、放射性核種の浸出率を満足するような固化体を必要とする点である。

ところが、前述したように従来の研究は、セメント固化体の圧縮強度、固化体からの放射性核種の浸出といった問題に集中しており、このような容積的な問題に対する考慮がほとんどされていない¹⁾。

そこで本研究では、陸地保管を目的としたセメント固化の評価法として容積的評価法を提案した。本評価法は固化対象物がセメント固化体に処理された時に固化体中で占める割り合い（容積比）の逆数として容積係数 $V F$ を考え、固化対象物、セメント、水の配合重量比変化に対応する固化体の圧縮強度、固化体からの放射性核種の浸出率などを同時に図示し、容積係数 $V F$ 、圧縮強度、放射性核種の浸出率を同時に満足する配合比を見つける方法である。ところで、容積係数 $V F$ が減少すれば、固化体からの放射性核種の浸出率は当然増加するが、固化体を陸地保管する場合には、普通雨水や地下水による浸水を防ぐ方法を講じるはずであるし、また固化対象物に放射性核種が吸着されている場合（イオン交換体などの場合）には浸出率は非常に小さい¹⁰⁾、その上仮りに固化体から放射性核種が浸出し、地中に浸入しても、本編第2章などで説明したように、放射性核種は地中をきわめてゆっくりと移動し、保管地外へ到達するころには、拡散希釈、自己崩壊等できわめて低濃度になり人体への影響はきわめて少ないものと考えられる¹²⁾。したがってセメントの固化体を陸地保管する場合には、固化体からの放射性核種の浸出の問題よりも、地震や積載荷重による崩壊時の飛散防止の面から、圧縮強度の問題を取り上げる方が重要であると考えられる。

そこで本章では簡便のため容積係数 $V F$ と固化体の圧縮強度のみを取り上げることにし、容積的評価法についての説明を行った。

つぎに、実際に固化対象物として有機、無機イオン交換体などを用いてセメント固化試験を行い、得られた試験結果が容積的評価法で評価できるかどうかについて検討した。

第2節 容積的評価法

2-1 容積係数 $V F$

一般にセメント固化体の試験を行うときには、固化されようとする材料（以後骨材と書く）およびセメントと水との重量比でデータを処理しているものが多い^{2) 3) 13)}。

なぜなら骨材、セメントは各々粒度、空隙率などが異なるため、容積の増加がたし算で表わせないので、重量比を使用する方が便利であるし、水とセメントの重量比はセメントミルクの練りませやすさの指針となったりして、現場の取り扱いのうえで役立つからである。

しかし前述のように、放射性廃棄物のセメント固化の問題を取り扱う場合には、容積的な取り扱いが必要になってくる。そこでつぎに示す容積係数 $V F$ を考える。

$$V F = \frac{\text{セメント固化体の容積}}{\text{骨材(固化される廃棄物)のみかけの容積}} \quad (\text{II-3-1})$$

$V F$ を厳密に測定するためには、メスシリンダのようなものに、ある重量配合比で骨材とセメントと水とを混入し、容積増加を測定しなければならない。しかし、セメント固化を実際に行う場合には、それほど厳密な配合を行わないため、つぎに述べる簡便法で $V F$ を求めるのが実用的である。

セメント固化体の容積を V 、骨材（固化される廃棄物）がセメント固化体中で占める重量比を α 、セメント固化体のみかけの比重 ρ 、骨材のみかけの比重を β とすると、(II-3-1) 式は次のように書ける。

$$V F = \frac{V}{\rho \cdot V} \cdot \frac{\beta}{\alpha / \beta} = \frac{\beta}{\alpha \rho} \quad (\text{II-3-2})$$

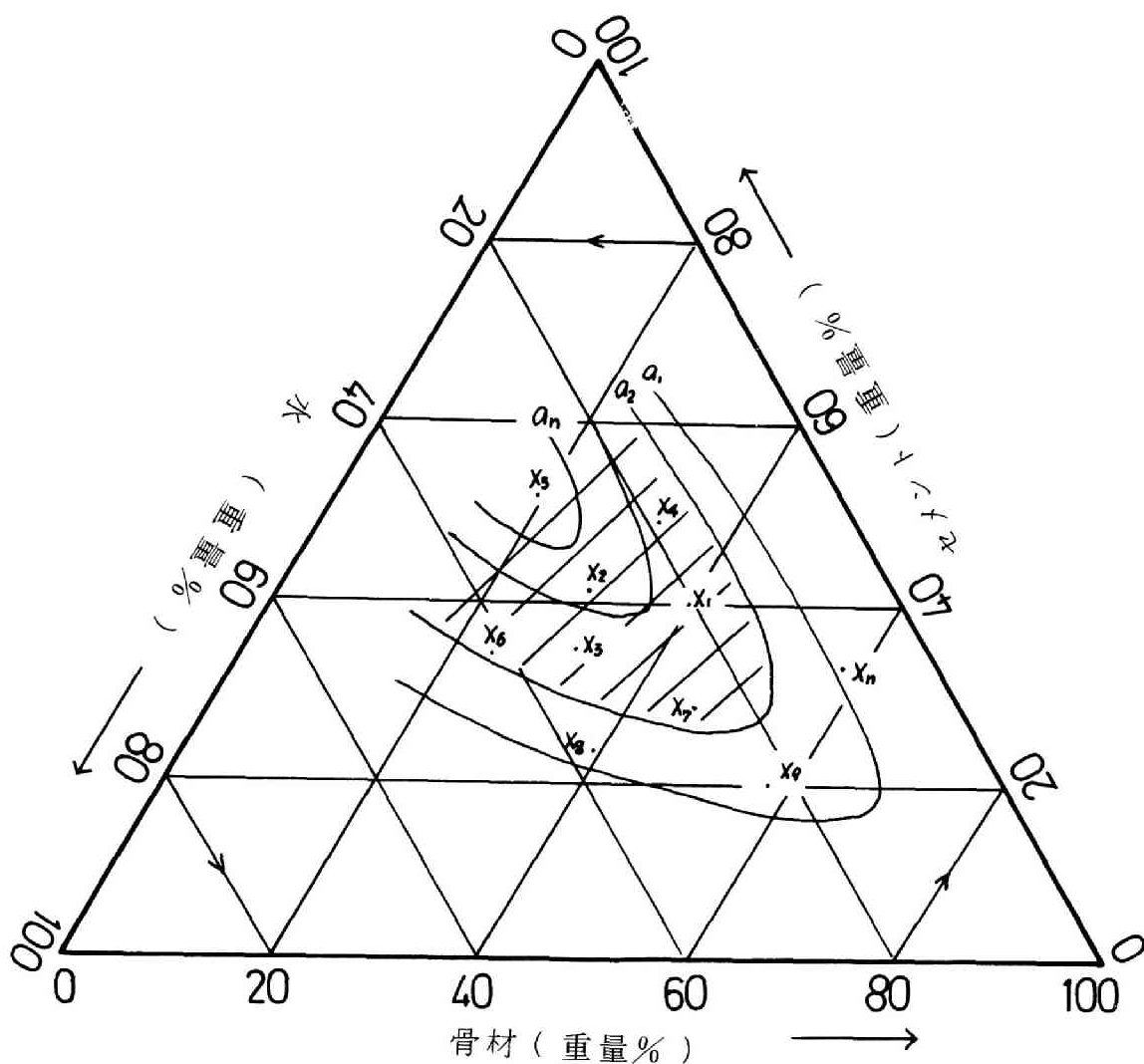
(II-3-1) 式の α 、 β 、 ρ は固化試験の際に容易に測定できるので、骨材、セメント、水の各配合比で作成したセメント固化体の容積係数は容易に求めることができ、最低必要強度を設定すれば、この強度を満たす固化体のうち容積係数の小さいものが、望ましい配合比のセメント固化体といえる。

2-2 容積的評価法

セメント固化体の強度試験の結果は普通、縦軸に圧縮強度をとり、横軸に骨材セメント比をとり、各水セメント比別に圧縮強度と骨材セメント比の関係として表わしている。しかし、この方法では、容積係数を同時に表わし、評価することができない。

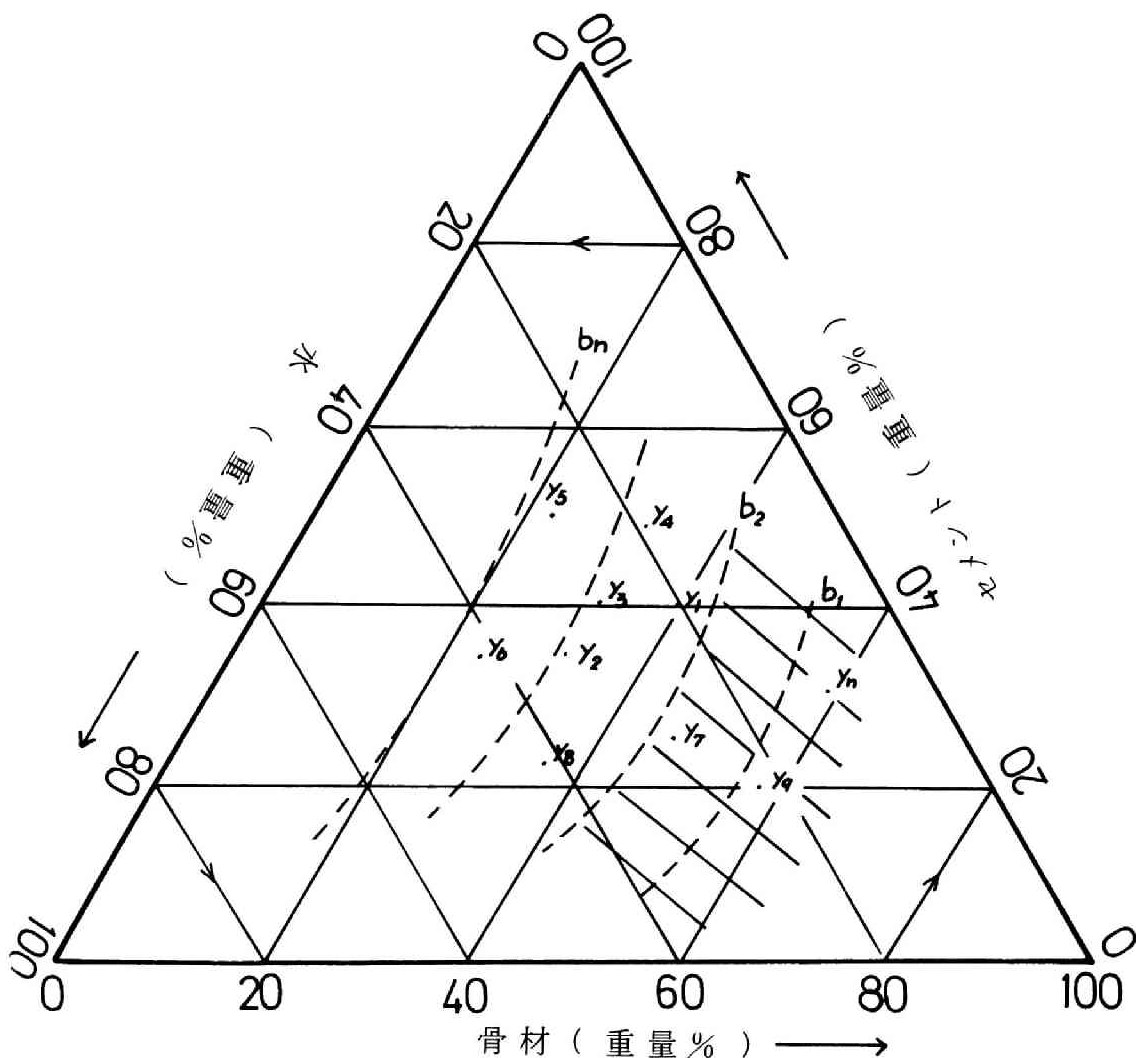
そこで、図 II-3-1 のようにガラス、合金等の組成を表示するときによく用いられている水、セメント、骨材を三成分とする三角座標を使用する。

まず図 II-3-1 に示したように、各底辺にそれぞれ骨材、セメント、水の重量%



図Ⅱ-3-1 等強度曲線

をとり、三角座標内の任意点の骨材、セメント、水の重量%の合計が 100 になるように定める。読みとり方は図Ⅱ-3-1に矢印で示したように右横、右上がりとする。そこでまず、セメント固化体の強度試験結果を三角座標に表示すると、各点に対応する圧縮強度が図Ⅱ-3-1の $x_1 \sim x_n$ のように記入される。これらの $x_1 \sim x_n$ を基にして圧縮強度が等しい点をむすんで、いわゆる等高線（等強度曲線）を描くと図Ⅱ-3-1のように実線で示した曲線が描けるはずである。一般に骨材%が小さく、セメント%が大きくなるほど強度が大きくなる（水%があまり少なくなると固化しなくなる限界点がある）。そこで、図Ⅱ-3-1では左上方向に行くに従って強度が大き



図Ⅱ-3-2 等VF曲線

くなるので、 $a_1 \sim a_n$ の等強度曲線は左にあるものほど大きな強度を示す線であるといえる。したがって最低必要強度を $a_2 \text{ kg/cm}^2$ とすると、この条件を満たす範囲は図Ⅱ-3-1の斜線部分である。

同様にして容積係数についても図Ⅱ-3-2に示すように、各点に対応するVFが $y_1 \sim y_n$ のように記入できる。これらの $y_1 \sim y_n$ の値をもとにして等VF曲線を描くと、図Ⅱ-3-2に示す破線曲線 $b_1 \sim b_n$ のようになる。一般にVFの値は、骨材%が大きく、セメント%が小さくなるほど小さくなる。そこで図Ⅱ-3-2では右下方向に行くにしたがってVFが小さくなるので、 $b_1 \sim b_n$ の等VF曲線は右にあるもの

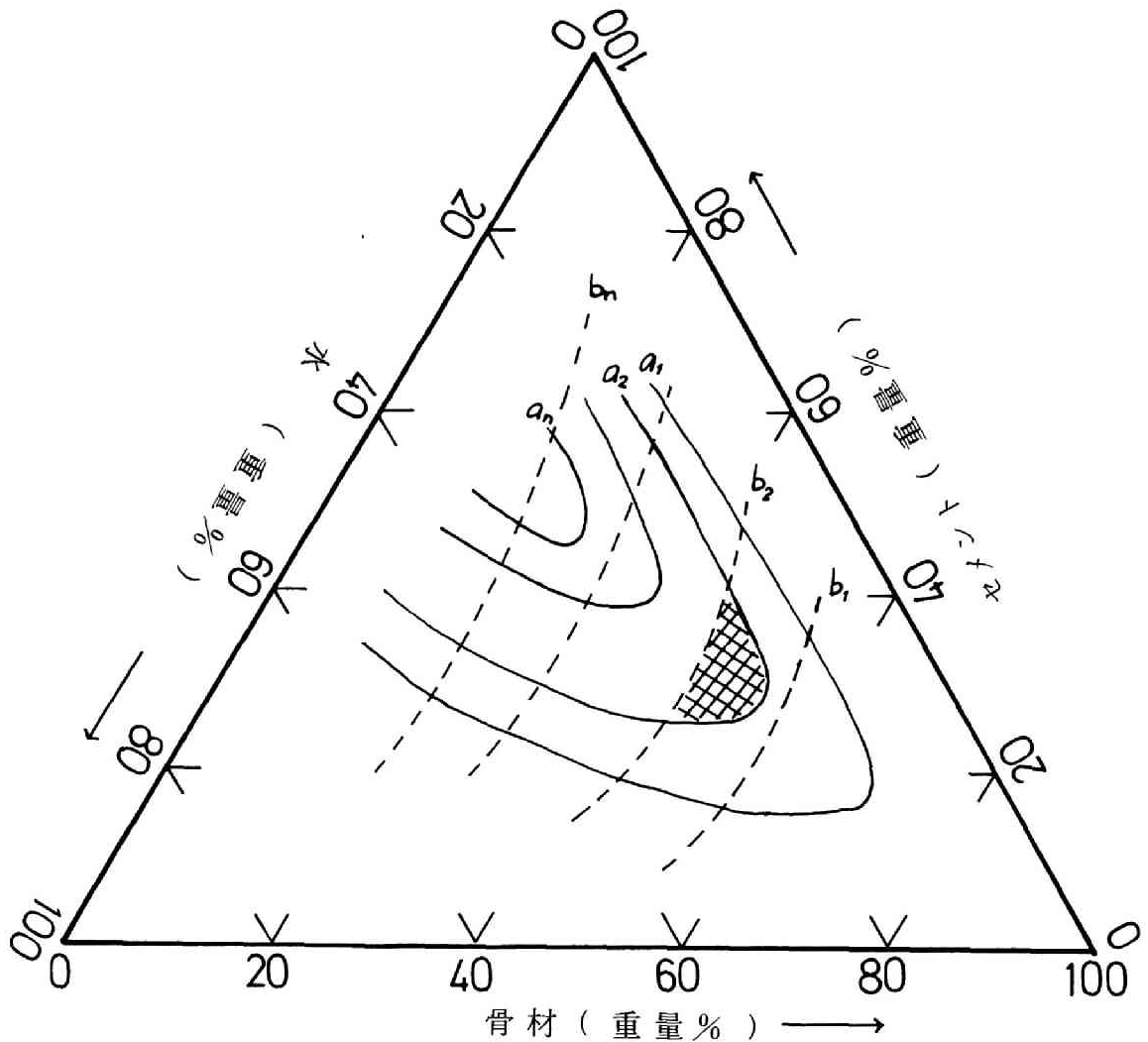


図 II - 3 - 3 容積的評価法の説明

ほど小さな VF を示す線であるといえる。そこで許容できる VF の最高値を b_2 とすると、この条件をみたす範囲は図 II - 3 - 2 の斜線部分である。

以上のようにして圧縮強度、容積係数 VF を示す曲線が別々に求められるのを同時に表わすと、図 II - 3 - 3 のようになる。そこで圧縮強度が最低 $a_2 \text{ kg/cm}^2$ 必要で、 VF は b_2 以下にしたいという条件を満たす個所は、図 II - 3 - 3 に示す斜線部分であるといえる。

なお、セメント固化体作成時の重量配合比は一般にセメント：骨材：水として $1 : m : n$ として表現するが、この重量配合比 $1 : m : n$ に対応する点は三角座標内で容

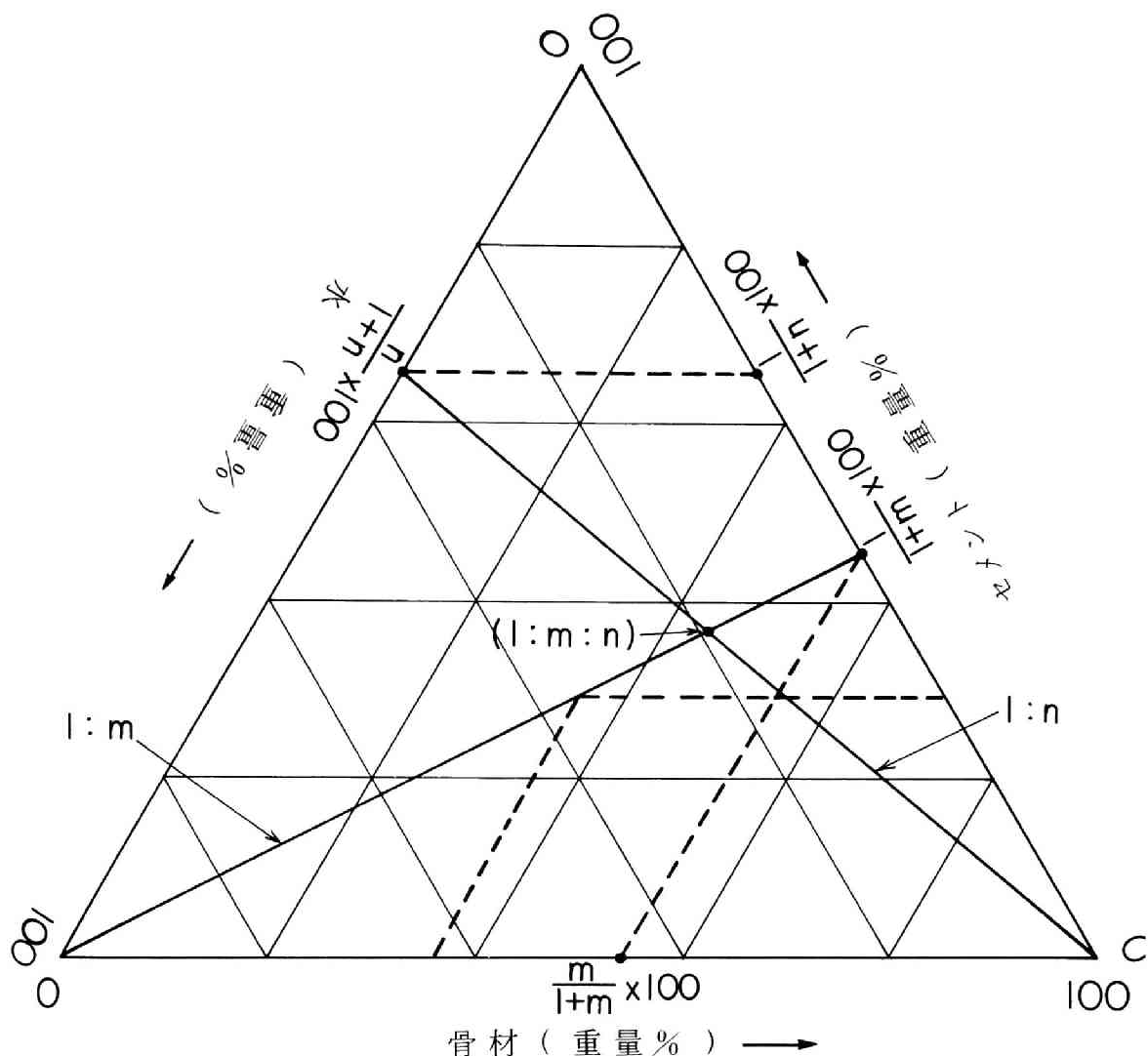
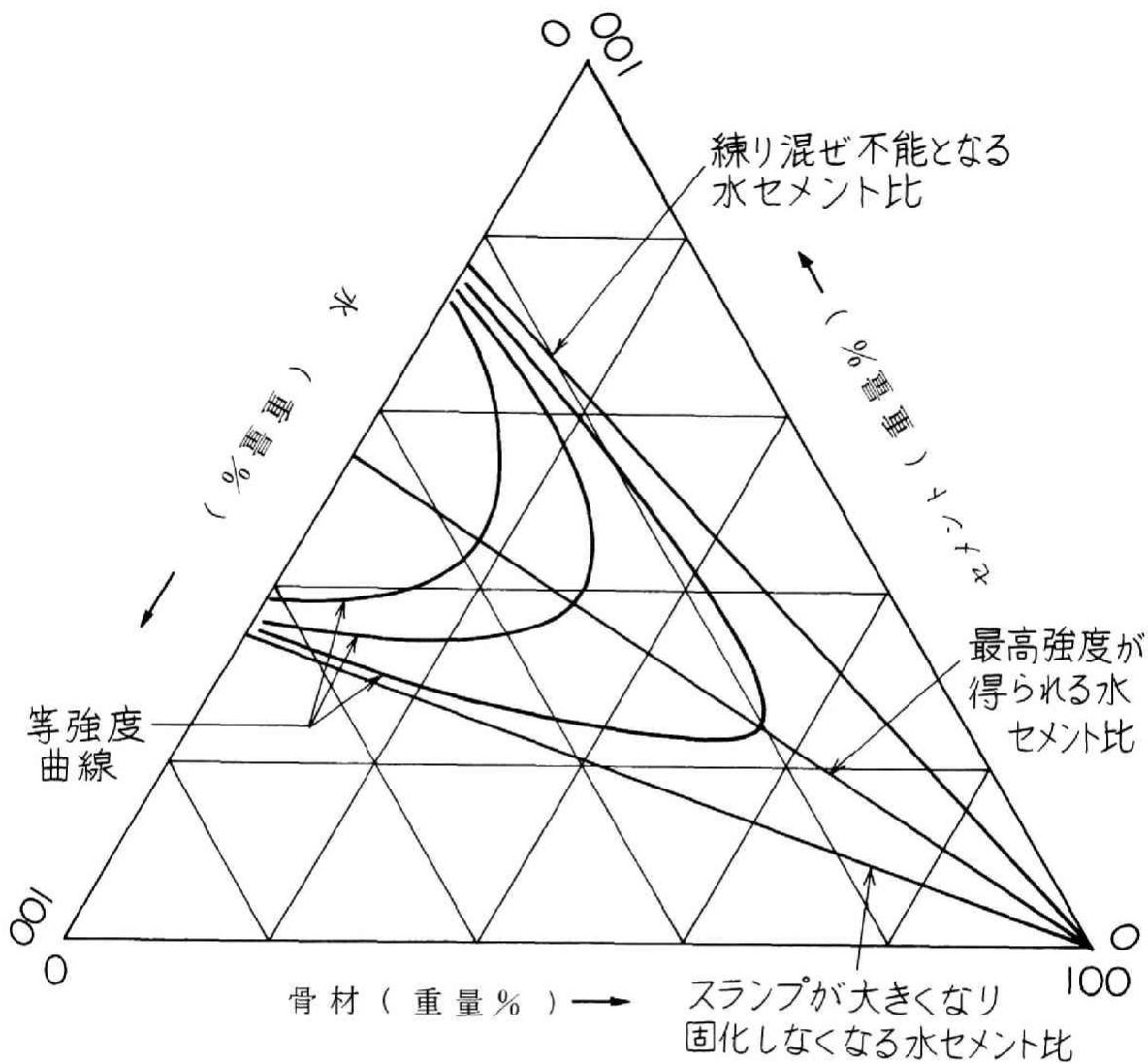


図 Ⅱ - 3 - 4 重量配合比を用いて三角座標内にプロットする方法

易に表示できる。この様子を図Ⅱ-3-4に示した。いまセメントと骨材だけの比 1 : m だけに限って検討してみると、図Ⅱ-3-4に示しれように、セメント骨材比 1 : m になる点の集合は直線となり、この直線がセメント 0 %、骨材 0 % の点と、セメント $\frac{1}{1+m} \times 100\%$ 、骨材 $\frac{m}{1+m} \times 100\%$ の点を結んだものであることは三角形の相似などの法則から容易にわかる。同様にセメントと水との比 1 : n についても、1 : n を示す直線はセメント 0 %、水 0 % の点とセメント $\frac{1}{1+n} \times 100\%$ 、水 $\frac{n}{1+n} \times 100\%$ の点を結んだものであることがわかる。したがって重量配合比 1 : m : n を示す点は、1 : m と 1 : n とを示す両直線の交叉点であることがわかり、あらかじめ、いろいろ



図Ⅱ-3-5 三角座標内での等強度曲線の特徴

の値の m と n について $1 : m$ 、 $1 : n$ を示す直線を描いておけば、任意の $1 : m : n$ を表わす点を容易にみつけることができるわけである。

また、水セメント比 $1 : n$ が直線で示されることから図Ⅱ-3-5に示したように、練り混ぜ不能となる水セメント比を示す直線とスランプが大きくなり固化しなくなる水セメント比を示す直線とが、等強度曲線の存在限界を示すことになり、等強度曲線は両直線内に最高強度が得られる水セメント比を示す直線上にピークが集まる何層もの山形曲線として示されることになる。また、等 $V F$ 曲線も当然両直線内にしか存在

しないことは明らかである。

また本評価法を用いると、ある骨材では大体 V_F がいくらのときに圧縮強度がいくらになるというようにも使用できるし、各種骨材で作成したセメント固化体の圧縮強度の比較が、重量比でなく実用的な容積係数といった観点から容易に比較できる。

そこで本評価法が実際の固化試験に適用できるかどうかを、次節に述べる試験結果について検討する。

第3節 固化試験

3-1 固化対象物

実験に用いる固化対象物としては、原子力利用施設から大量に発生し、かつ放射能度が高く¹⁴⁾、しかも焼却処理もあまり適さず、セメント固化した時でも大きな圧縮強度が得られない^{2) 3)}とされている有機および無機イオン交換体を取り上げた。

無機イオン交換体としてはグリーンサンド（カリフォルニア産、16～30メッシュ）とバーミキュライト（福島県産、未焼成、16～30メッシュ）とを用い、有機イオン交換体としてはアンバーライト IR-120B とアンバーライト IRA-410 とを用いた。

これらの交換体は、実際の廃水処理に使ったものでない未使用のものであるが、まず24時間水中に浸した後に、水切りを行ったものである。水切りを行った状態で含水率を測定すると、表Ⅱ-3-1のようになった。そこで以後、表Ⅱ-3-1に示す水分を含んだ状態を交換体自身として考えることにする。なお交換体の真密度、みかけの密度、空隙率をも測定し、あわせて表Ⅱ-3-1に示した。

表Ⅱ-3-1 固化試験に用いた材料

材 料	ポルトランド セメント	グリーンサンド	バーミキュライト	アンバーライト IRA-410	アンバーライト IR-120B
含 水 率 %	—	15.8	28.4	45.2	46.3
真 密 度 g/cm^3	3.25	2.76	1.94	1.15	1.33
みかけ密度 g/cm^3	1.53	1.93	0.99	0.69	0.88
空 隙 率 %	53.0	30.8	48.7	39.7	34.3
有 効 径 mm	0.99	0.59 —1.19	—	0.38 —0.45	0.45 —0.60

3-2 試験方法

固化には、市販の普通ポルトランドセメントを用いた。24時間浸水後水切りを行った交換体をセメントと水と一緒に、所定の重量配合比で練り混ぜた。

配合比の設定は、ワーカビリティ¹⁵⁾を考慮して、水セメント比を固定して、骨材セメント比を変化させる一般的方法を用いた。

練り混ぜたモルタルは内径 5 cm、高さ 10 cm の円筒型枠に、気泡を入れないように注意しながら打設した。打設したモルタルは 24 時間経過すれば固化するので、24 時間後に型枠から取り出し、ポリエチレン袋に封入し、湿度 100 %、気温 $25 \pm 3^{\circ}\text{C}$ で養生した。

打設後 28 日を経て、固化体の体積、重量を測定し、(II-3-2) 式より VF を求めた後に一軸圧縮強度試験を行った。

3-3 試験結果

グリーンサンド、パーミキュライト、アンバーライト IR-120 B, アンバーライト

表 II-3-2 グリーンサンドのセメント固化試験結果

No.	A	B	比 重	Volume factor	圧縮強度 kg/cm^2
1	1 : 1.2 : 0.3	40 : 48 : 12	2.0	2.0	210
2	1 : 1.8 : 0.3	32 : 58 : 10	2.0	1.7	136
3	1 : 1.2 : 0.4	38 : 48 : 16	2.0	2.1	239
4	1 : 1.5 : 0.4	34 : 52 : 14	2.0	1.9	196
5	1 : 1.8 : 0.4	31 : 56 : 13	2.0	1.7	196
6	1 : 2.1 : 0.4	29 : 60 : 11	2.0	1.6	163
7	1 : 2.4 : 0.4	26 : 63 : 11	2.0	1.5	147
8	1 : 1.2 : 0.5	37 : 44 : 19	2.0	2.2	180
9	1 : 1.5 : 0.5	33 : 50 : 17	2.0	1.9	195
10	1 : 1.8 : 0.5	30 : 55 : 15	2.0	1.8	179
11	1 : 2.1 : 0.5	28 : 58 : 14	2.0	1.7	146
12	1 : 2.4 : 0.5	26 : 62 : 12	2.0	1.6	72
13	1 : 0.9 : 0.6	40 : 36 : 24	2.0	2.7	108
14	1 : 1.2 : 0.6	36 : 43 : 21	2.0	2.2	103
15	1 : 1.8 : 0.6	29 : 53 : 18	2.0	1.8	56
16	1 : 2.4 : 0.6	25 : 60 : 15	2.0	1.6	44
17	1 : 0.9 : 0.7	38 : 35 : 27	2.0	2.8	78
18	1 : 1.2 : 0.7	34 : 42 : 24	2.0	2.2	69
19	1 : 1.8 : 0.7	29 : 51 : 20	2.0	1.9	61
20	1 : 2.4 : 0.7	24 : 59 : 17	2.0	1.6	26

A ; セメント : グリーンサンド : 水重量比 B ; セメント : グリーンサンド : 水重量%

IRA-410の固化体に対する28日一軸圧縮強度と容積係数VFとの測定結果を表Ⅱ-3-2から表Ⅱ-3-5までに示した。固化体は同一重量配合比について3～5個の試料を作成し、一軸圧縮強度およびVFの値を平均値として求めた。

グリーンサンド固化体の試験結果は表Ⅱ-3-2に示してあるが、水セメント比が0.2以下ではワーカビリティが悪く、練りませ不能となった。また、水セメント比が0.6以上になると、いわゆるスランプが大きくなった。

表Ⅱ-3-2の結果からは、重量配合比から見れば水セメント比を0.4に設定したときが一番大きな圧縮強度が得られたのが読みとれる。グリーンサンドは他のイオン交換体に比し、形状、比重等がいわゆる砂に良く似ているので大きな強度のセメント固化体を得られたが、容積係数VFはあまり小さくならないようである。

バーミキュライト固化体に関する試験結果は表Ⅱ-3-3に示しているが、バーミキュライトは変性雲母岩の一種で剝離性、保水性に富み、空隙率が大きいため、モルタルのワーカビリティを悪くした。水セメント比が0.3以下では練りませ不能で、ある程度水セメント比を増した方が大きな強度が得られるのがわかったが、水セメント比を大きくしたことは、全体的な圧縮強度の低下につながった。しかしVFに関して

表Ⅱ-3-3 バーミキュライトのセメント固化試験結果

No.	A	B	比 重	Volume factor	圧縮強度kg/cm ²
1	1 : 0.5 : 0.4	53 : 26 : 21	1.9	2.0	192
2	1 : 0.7 : 0.4	48 : 33 : 19	1.9	1.6	115
3	1 : 0.9 : 0.4	43 : 39 : 18	1.9	1.3	106
4	1 : 1.0 : 0.4	42 : 42 : 16	1.9	1.2	92
5	1 : 1.3 : 0.4	37 : 48 : 15	1.8	1.1	68
6	1 : 1.6 : 0.4	33 : 53 : 14	1.7	1.1	45
7	1 : 0.5 : 0.5	50 : 25 : 25	1.8	2.2	113
8	1 : 0.6 : 0.5	48 : 29 : 23	1.8	1.9	111
9	1 : 0.9 : 0.5	42 : 38 : 21	1.8	1.4	91
10	1 : 1.2 : 0.5	37 : 44 : 19	1.8	1.3	80
11	1 : 1.3 : 0.5	36 : 46 : 18	1.8	1.2	75
12	1 : 1.5 : 0.5	33 : 50 : 17	1.8	1.1	58
13	1 : 0.5 : 0.6	48 : 24 : 28	1.8	2.3	135
14	1 : 0.8 : 0.6	42 : 33 : 25	1.9	1.6	139
15	1 : 0.9 : 0.6	40 : 36 : 24	1.9	1.5	141
16	1 : 1.1 : 0.6	37 : 41 : 22	1.9	1.3	139
17	1 : 1.3 : 0.6	34 : 45 : 21	1.9	1.2	92

A ; セメント : バーミキュライト : 水重量比 B ; セメント : バーミキュライト : 水重量%

表Ⅱ－３－４ アンバーライト IR-120 B のセメント固化試験結果

№	A	B	比 重	Volume factor	圧縮強度 kg/cm ²
1	1 : 0.5 : 0.2	59 : 29 : 12	1.9	1.6	197
2	1 : 0.7 : 0.2	53 : 37 : 10	1.7	1.4	107
3	1 : 0.2 : 0.3	67 : 13 : 20	1.9	3.6	302
4	1 : 0.3 : 0.3	63 : 19 : 18	1.9	2.4	258
5	1 : 0.5 : 0.3	56 : 28 : 16	1.9	1.7	115
6	1 : 0.2 : 0.4	63 : 13 : 24	1.8	3.8	183
7	1 : 0.3 : 0.4	59 : 18 : 23	1.8	2.7	176
8	1 : 0.2 : 0.5	59 : 12 : 29	1.8	4.1	102
9	1 : 0.3 : 0.5	56 : 17 : 27	1.6	3.2	98
10	1 : 0.5 : 0.5	50 : 25 : 25	1.6	2.2	48

A ; セメント : アンバーライト IR-120 B : 水重量比

B ; セメント : アンバーライト IR-120 B : 水重量%

表Ⅱ－３－５ アンバーライト IRA-410 のセメント固化試験結果

№	A	B	比 重	Volume factor	圧縮強度 kg/cm ²
1	1 : 0.4 : 0.3	59 : 24 : 17	1.8	1.6	212
2	1 : 0.5 : 0.3	56 : 28 : 16	1.7	1.4	172
3	1 : 0.6 : 0.3	53 : 32 : 15	1.7	1.3	78
4	1 : 0.9 : 0.3	46 : 41 : 13	1.5	1.1	65
5	1 : 1.3 : 0.3	38 : 50 : 12	1.4	1.0	22
6	1 : 0.4 : 0.4	56 : 22 : 22	1.8	1.7	175
7	1 : 0.5 : 0.4	53 : 26 : 21	1.6	1.7	131
8	1 : 0.6 : 0.4	50 : 30 : 20	1.7	1.4	60
9	1 : 0.7 : 0.4	48 : 33 : 19	1.5	1.4	54
10	1 : 0.9 : 0.4	43 : 39 : 18	1.5	1.2	49
11	1 : 1.1 : 0.4	40 : 44 : 16	1.4	1.1	44
12	1 : 1.3 : 0.4	37 : 48 : 15	1.4	1.0	20
13	1 : 0.4 : 0.5	53 : 21 : 26	1.8	1.8	86
14	1 : 0.5 : 0.5	50 : 25 : 25	1.6	1.7	74
15	1 : 0.7 : 0.5	45 : 32 : 23	1.4	1.5	65
16	1 : 0.9 : 0.5	42 : 38 : 20	1.4	1.3	40
17	1 : 1.1 : 0.5	39 : 42 : 19	1.4	1.2	41
18	1 : 1.3 : 0.5	36 : 46 : 18	1.3	1.2	8
19	1 : 0.5 : 0.6	48 : 24 : 28	1.6	1.8	62
20	1 : 1.3 : 0.6	34 : 45 : 21	1.4	1.1	18

A ; セメント : アンバーライト IRA-410 : 水重量比

B ; セメント : アンバーライト IRA-410 : 水重量%

は、グリーンサンドよりも小さな値を示すことが読みとれた。また混和剤として CaCl_2 を混入すると、圧縮強度はかなり増大したが、この結果は表Ⅱ－3－3では省略した。

アンバーライト IR-120 B 固化体に関する試験結果は、表Ⅱ－3－4に示しているが、水セメント比が 0.1 以下ではワーカビリティが悪くなり、練り混ぜ不能であった。なお水セメント比が 0.6 以上では、固化が不能で打設後約 1 週間で養生中に膨張し、崩壊した。また樹脂セメント比に関しても 0.8 以上では養生中に崩壊した。表Ⅱ－3－4より、樹脂セメント比が非常に小さいものしか固化しないが、VF という観点からみると他の交換体に比して、重量配合比から受ける印象ほどは、セメント固化が不利ではないことが読みとれる。また樹脂自身の特性を調べるため、交換基の型を Na^+ 型だけでなく、 Ca^{2+} 型、 H^+ 型に変えて種々の強度試験も行ったが、この研究の主目的が容積的評価法の応用であるため、これらのデータは省略した。

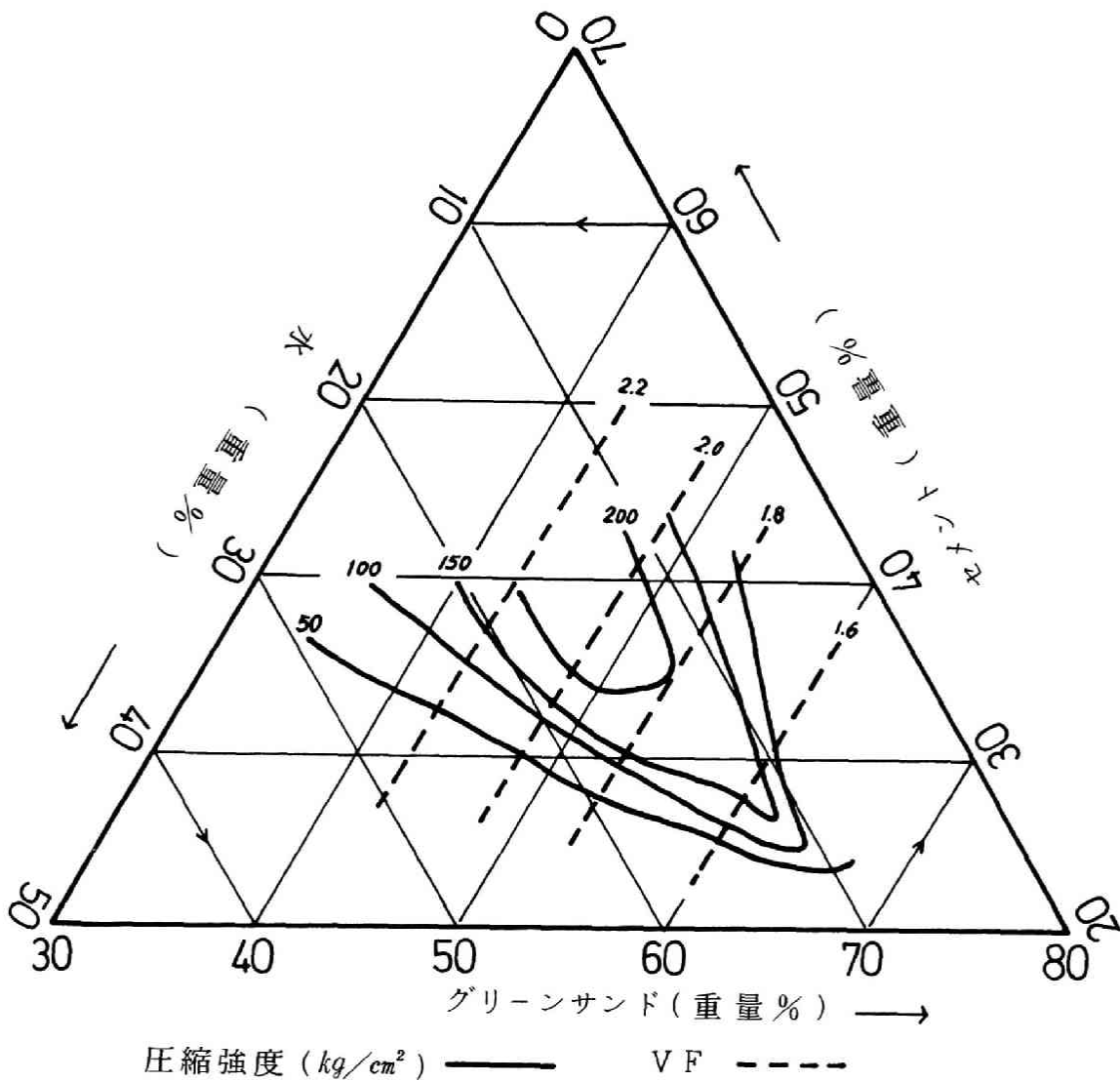
アンバーライト IRA-410 の固化試験の結果は表Ⅱ－3－5に示した。水セメント比が 0.2 以下では、ワーカビリティが悪く、練り混ぜ不能となり、水セメント比が 0.5 以上ではスランプが大きくなり、樹脂セメントペーストの分離が起った。また、樹脂セメント比が 0.6 以上になると強度は急速に低下したが、アンバーライト IR-120 B のように簡単には崩壊しなかった。圧縮強度に関してはグリーンサンドなどに比べると、それほど大きなものではないが、VF に関しては非常に小さな値を示し、アンバーライト IRA-410 はセメント固化をするのが有利な交換材であることが予測できる。

表Ⅱ－3－2から表Ⅱ－3－5までを比べてみても、また縦軸に圧縮強度、横軸に骨材セメント比といったグラフを描いても、容積と強度の関係ははっきりしないし、また 4 つの交換体間の優劣も判定しにくい。そこで、前述した容積的評価法を応用して解析を行ってみる。

第 4 節 容積的評価法の応用

表Ⅱ－3－2に示したグリーンサンド固化体の圧縮強度試験結果を、本章第 2 節の容積的評価法で示したように三角座標で表現してみると図Ⅱ－3－6のようになる。

図Ⅱ－3－6において実線が等強度曲線、破線が等 VF 曲線である。また図Ⅱ－3－6において、各底辺の座標の値が、グリーンサンドに関しては 30 % から 80 %、セメントに関しては 20 % から 70 %、水に関しては 0 % から 50 % になっているが、これは第 2 節で説明した座標の一部を拡大したもので、各点の座標の合計が 100 % になればよい。第 4 成分を考える必要があるときは、それをどれかの成分に含めて 3 成分と



図Ⅱ-3-6 グリーンサンド固化体の容積的評価法

して表示するか、または第4成分がa%のとき各点の座標の合計を(100-a)%にすればよい。

同じような方法でパーミキュライト、アンバーライトIR-120B、アンバーライトIRA-410について、それぞれ図Ⅱ-3-7から図Ⅱ-3-9までに固化試験の結果を表現した。

図Ⅱ-3-6から図Ⅱ-3-9までの三角座標のとり方はさまざまであるが、各拡大率は同じであるので、目的とする28日圧縮強度とV Fとで囲まれた面積の大きさは

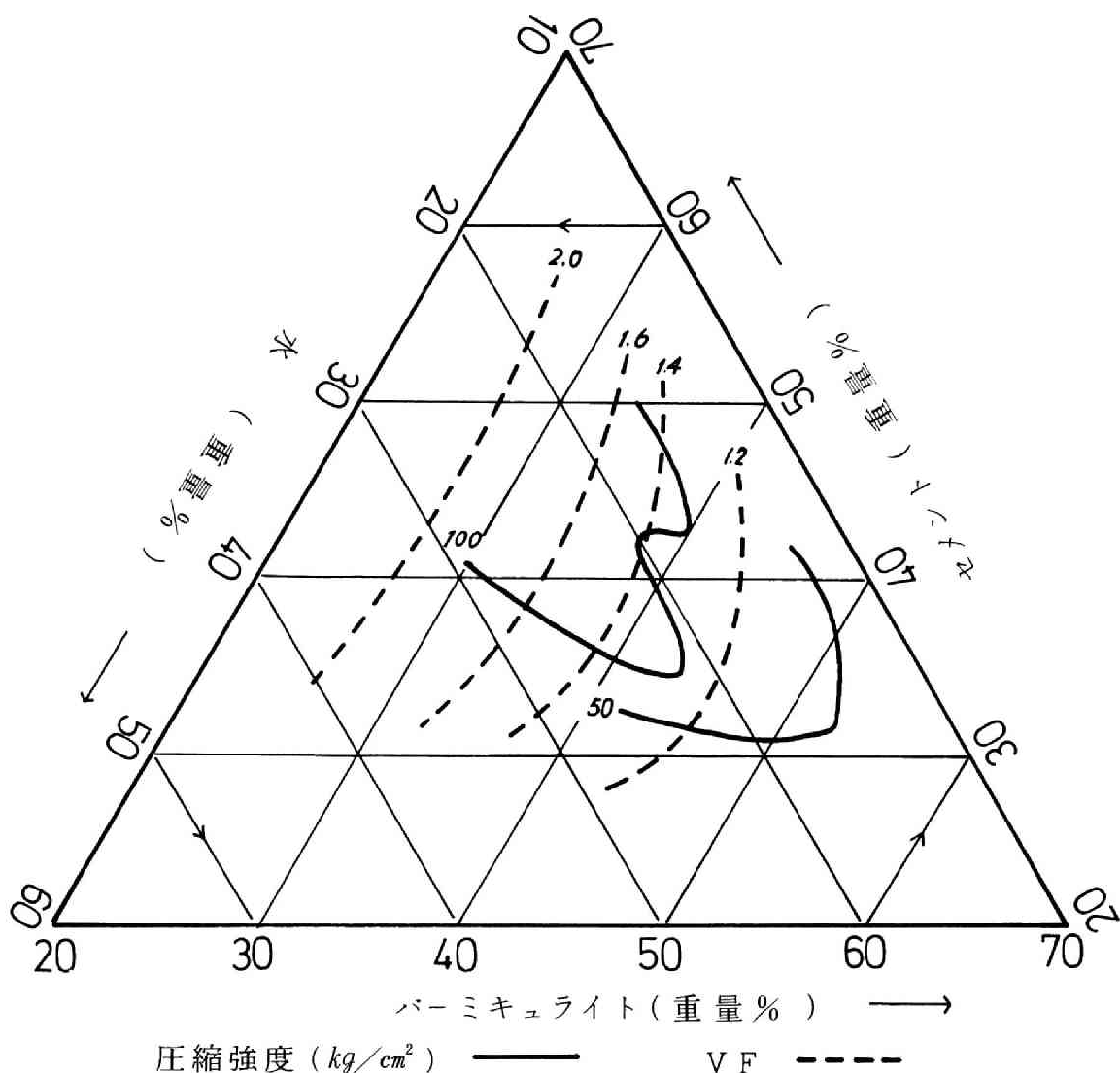
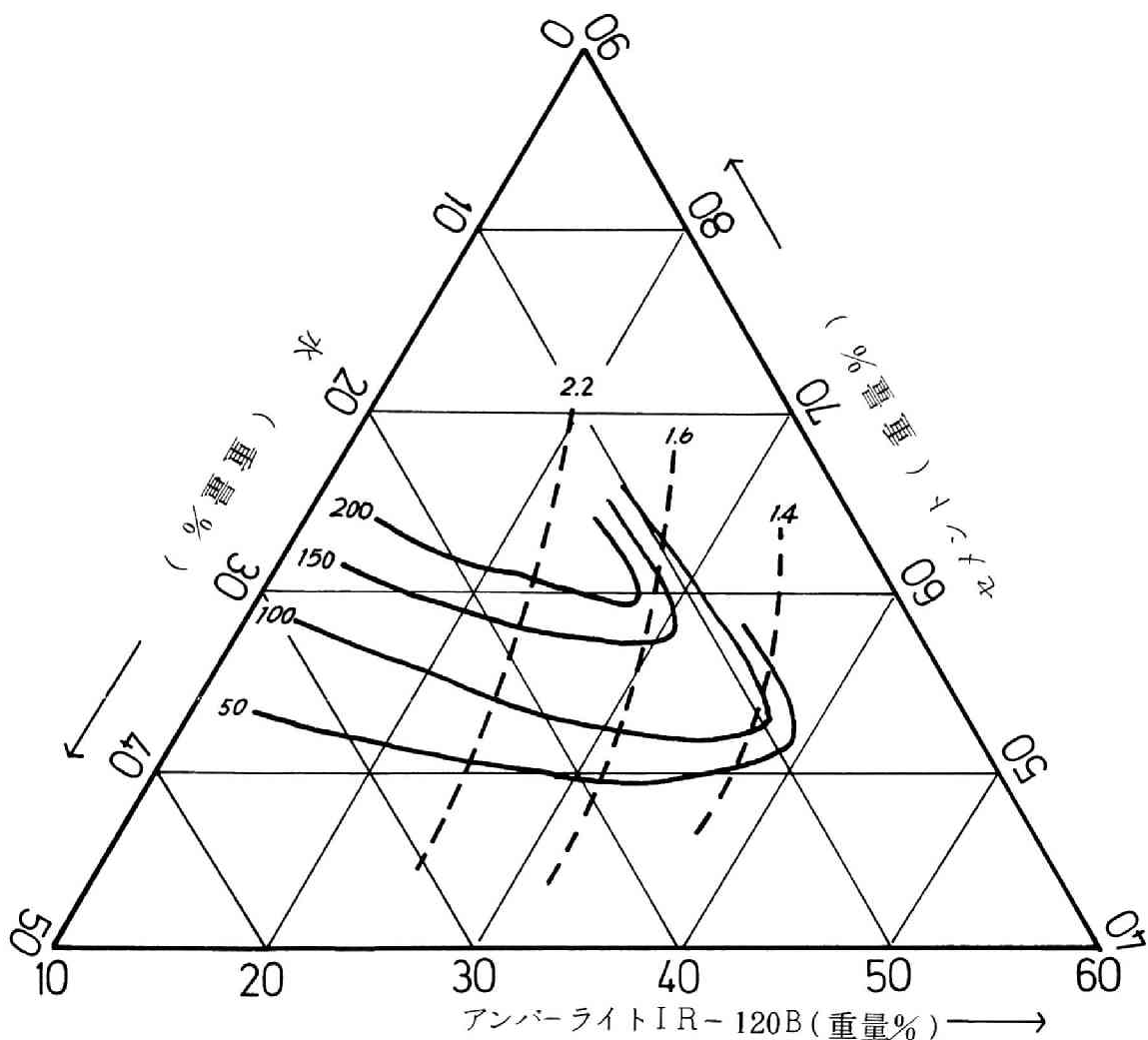


図 II - 3 - 7 バーミキュライト固化体の容積的評価法

直接比較できる。

また第 2 節で説明したように、試験結果を三角座標にプロットすると、同じ水セメント比を持つ各点を結んだ線は右下へ下がった直線となっているのがわかり、これはたとえば図 II - 3 - 6 のグリーンサンドの圧縮強度曲線のように、等強度曲線が右下へするどく突出しているのは、この部分の水セメント比（この場合 0.4）が強度に関しては最適であることを示している。

図 II - 3 - 6 から図 II - 3 - 9 までを比較してみると、圧縮強度に関してはグリー



圧縮強度 (kg/cm^2) ——— VF ———

図 II - 3 - 8 アンバーライト IR-120 B 固化体の容積的評価法

ンサンドとアンバーライト IR-120 B とがすぐれているが、容積係数 VF 的見地から見れば、グリーンサンドの VF は大きすぎることがわかる。また、バーミキュライトとアンバーライト IRA-410 に関しては、どちらも圧縮強度的にはそれほど大きな圧縮強度を示さないが、圧縮強度が $100 \text{ kg}/\text{cm}^2$ 程度でも良い（陸地保管の場合はせいぜい数十 kg/cm^2 が必要な程度である¹²⁾）場合には、VF 的見地からは非常に有利であり、陸地保管のための固化処理という見地から見た場合に、これらイオン交換体のセメント固化は、従来からいわれているほど不利な固化法^{2) 3)} でないことがわかった。

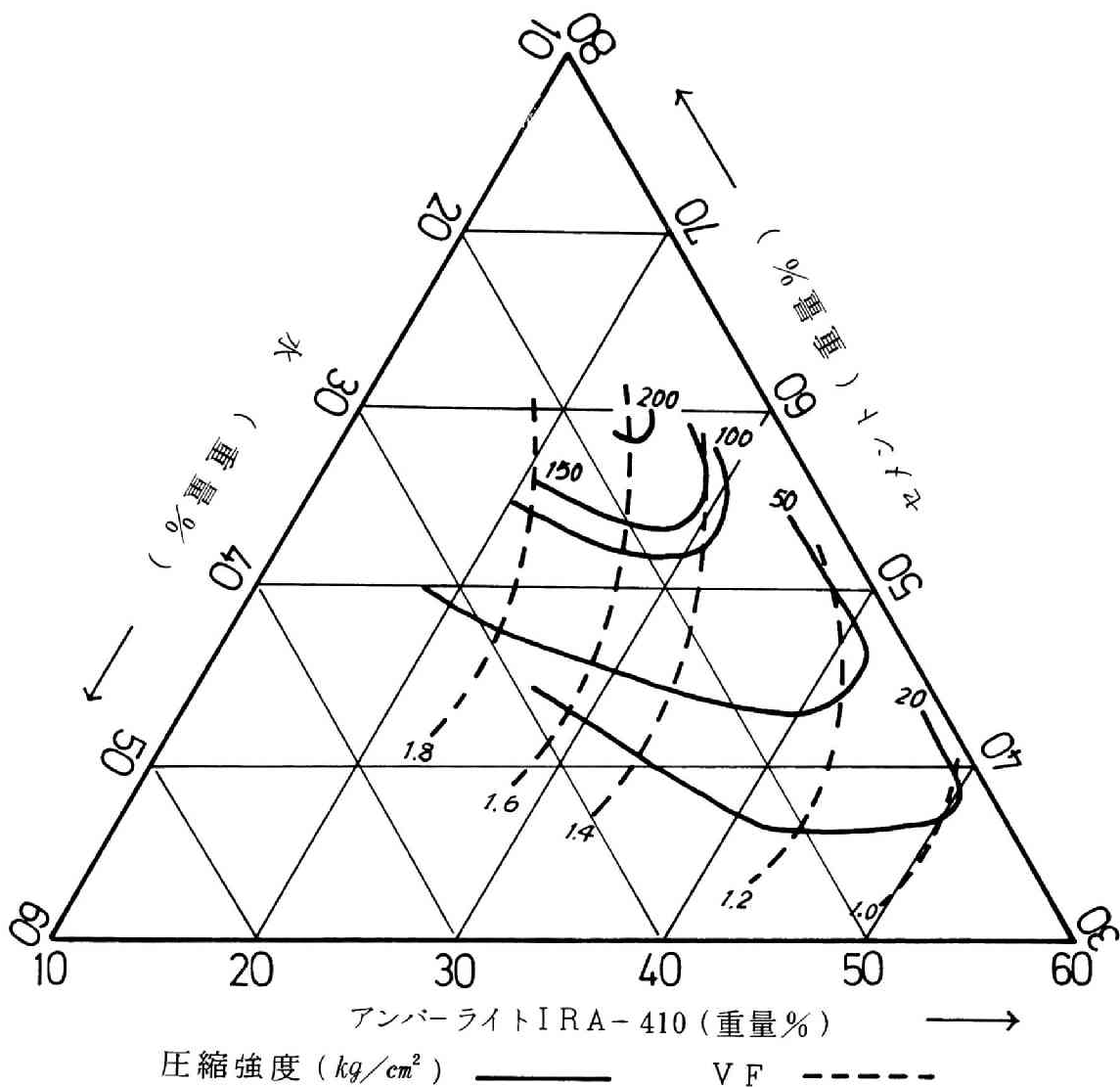


図 II - 3 - 9 アンバーライトIRA-410 固化体の容積的評価法

以上の結果、容積的評価法は実際の固化試験の結果に応用でき、実用的にかつ容易に試験結果が判読できる有効な方法であることがわかった。

また、図 II - 3 - 6 から図 II - 3 - 9 に示したような骨材ごとの三角座標図をあらかじめ試験を行って作成しておけば、実際に固化体を作成した時に、計量ミス等がある目的とする重量配合比の固化体を作成できなくても、計量時の数値が残っていれば、すなわち配合重量に関する何らかの数値がわかれば逆に、三角座標図より圧縮強度を保証することができ、きわめて実用性が高いことがわかった。

なお、本章では容積係数 V_F と圧縮強度とだけを比較する容積的評価法について述べたが、本法に用いた三角座標図上で同時に諸条件を比較する方法はきわめて有用であると考えられる。以下にそれらの有用性について列挙する。

1. 配合重量比の変化による放射性核種のセメント固化体からの浸出率についてのデータも、三角座標内にプロットできるので容積評価と同時に、安全評価の問題も扱うことができる。

2. 放射性廃棄物を発生させる原子力利用施設と陸地保管地とが同一敷地内にない場合には、セメント固化体を輸送する必要がある、この場合固化体はIAEAの輸送規則¹⁶⁾¹⁷⁾に定められた条件を満足しなければならない。すなわち、この輸送規則ではセメント1g当りに入れることのできる放射性物質質量¹⁶⁾、1週間当りの固化体からの放射性物質の浸出量の最大値などが定められている。そこでこれらの諸条件を三角座標内にあらかじめ示しておけば、作成しようとするセメント固化体が輸送規則に適合するか否かが簡単にわかる。

3. セメント固化を行うにあたっての作業の難易度（ワーカビリティ等）や、コスト等の経済性の問題等もあらかじめ三角座標内にプロットしておくことができるので、きわめて実用的である。

第5節 結論

本章においては、放射性廃棄物の陸地保管を目的とした固化法としてセメント固化を取り上げ、従来のセメント固化法に関する研究では主として固化体の圧縮強度に注目した研究が多くなされてきたが、ただ圧縮強度を上げる点だけにとらわれず、処理量（容積）をも併せて考えることが重要であることを述べた。

まず、セメント固化することによって固化対象廃棄物の容積が増大する係数として容積係数 V_F を提案した。

つぎに容積係数 V_F と固化体の圧縮強度とを三角座標内で同時に比較する方法すなわち容積評価法を提案した。また、容積的評価法に用いる三角座標には、従来から使用されている重量配合比をそのまま使用して対応する点をプロットすることができ、三角座標内に示された等強度曲線のピークの形から、最適水セメント比なども容易に判読出来ることを示した。

固化対象物として、グリーンサンド、バーミキュライト、アンバーライトIR-120B、アンバーライトIRA-410の無機および有機イオン交換体を用いてセメント固化

を行った。

固化実験の結果得られたデータは容積的評価法でうまく評価することができ、本評価法は実用的にかつ容易に試験結果を判読できる方法であることを知った。さらに、パーミキュライト、イオン交換樹脂等従来セメント固化があまり有利でないと思われてきたものについて、容積的評価法を用いた結果、陸地保管を目的とした場合には、これらの廃棄物をセメント固化することは必ずしも不利な方法でないことを知った。

また、本評価法で示した三角座標内にデータをプロットする手法は、単に容積問題のみならず、浸出率、圧縮強度等の安全評価に関する問題、輸送規則^{16) 17)}等の法律的な面からの制約に関する問題、固化作業にあたっての難易度や経済性等に関する問題を同時に取り扱うことができ、これらの諸問題に関するデータをあらかじめ、三角座標内にプロットしておけば、目的とする配合重量比の固化体の評価が簡単にでき、きわめて実用的であることを述べた。

第Ⅱ編 第3章参考文献

- 1) 筒井天尊，西牧研杜；保健物理，**9**，87（1974）
- 2) 寺島 泰；“放射性廃棄物の固化処理と海洋投棄処分に関する研究”，京都大学学位論文，45（1969）
- 3) 原子力安全研究協会編；“放射性廃棄物の固化試験，固体廃棄物処理処分委員会”33（1973）
- 4) 永倉 正；原子力産業会議原動研年次大会報告書（1972）.
- 5) 阿部博俊他；電力中央研究所技術第二研究所報告，71005，（1971）
- 6) 江村 悟，松鶴秀夫，比佐 勇，関 晋；“放射性廃棄物セメント固化体の安全評価 1.セメント固化体からの¹³⁷Csの浸出”，JAERI-M 5779（1974）.
- 7) 松鶴秀夫，比佐 勇，大内康喜，森山 昇，和達嘉樹，伊藤彰彦；“放射性廃棄物セメント固化体の安全評価 2.セメント固化体からの⁶⁰Coの浸出”，JAERI-M 6361（1976）.
- 8) 関 晋，大内康喜，比佐 勇；“海洋投棄にそなえたセメント均一固化体の高水圧試験”，JAERI-M 6364（1976）.
- 9) 関 晋，大内康喜，比佐 勇，江村 悟；“実大固化体高圧RI浸出試験装置”，

JAERI-M 6382 (1976).

- 10) 寺島 泰 ; “放射性廃棄物の固化処理と海洋投棄処分とに関する研究” , 京都大学学位論文, 105 (1969).
- 11) 寺島 泰 ; 土木学会論文報告集, **209**, 51 (1973).
- 12) 井上頼輝, 森沢真輔 ; 保健物理, **5**, 75 (1970).
- 13) 能見光彦 ; “中 低レベル放射性廃棄物の固形化” , FAPIG, **70**, 103 (1973).
- 14) 原子力安全研究協会編 ; “固体廃棄物処理処分委員会中間報告書” , 原安協報告 - 15 (1969).
- 15) 土木学会編 ; “新版 土木工学ハンドブック 中巻” , 技報堂, 865 (1974).
- 16) IAEA Safety Series No. 6 ; “Regulations for the Safety Series No. 6” , 1973 Revised Edition.
- 17) IAEA Safety Series No. 37 ; “Advisory Material for the Application of the IAEA Transport Regulations” .

結 論

第 1 節 本研究の総括

本論文の序論では本研究の目的と概要について述べた。まず、放射性廃棄物の処理処分の概要を述べ、廃棄物の最終処分法として、わが国においても実施可能な方法として陸地保管をとり上げた。

放射性廃棄物の陸地保管に関しては沢山の基礎的、工学的な問題があるが、第 I 編においては放射性核種の土砂への分配現象に関して基礎的な実験的研究を行うことにし、第 II 編において陸地保管に関する工学的な諸問題を検討し、その中で陸地保管予定地の調査研究と陸地保管を目的としたセメント固化の研究とを行うことにした。

第 I 編第 1 章では第 I 編の研究の概要について述べた。まず、放射性核種の地中移動に関する従来の研究について述べ、現在のところ井上の提案した遅れ係数 K_F を用いる方法が一番うまく放射性核種の地中移動を予測しうることを示した。ついでこの遅れ係数 K_F を決定する要因の大きなものの 1 つに放射性核種の土砂への分配があることを示した。一般に放射性核種が地中に混入してもその量は非常に微量で、地下水中に主として含まれる Ca^{2+} 等の大量の非放射性成分にその分配現象は支配されるが、その様子は十分には解明されていない。そこで第 I 編においては、放射性核種の分配に与える地下水中の非放射性成分の影響について研究することにした。

第 I 編第 2 章では微量な放射性陽イオンが土砂へ分配する場合に、 Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ 等の地下水中の非放射性陽イオンがそれぞれどのような影響を与えるかについて研究した。

実験には放射性陽イオンとして、 ^{22}Na , ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{60}Co , ^{65}Zn , ^{85}Sr , ^{138}Ba を使い、分配させる土砂としては KUR 砂（京都大学原子炉実験所地下帯水層より採取したもの）を用い、同時に比較のためグリーンサンドを交換吸着体として用いた。

まず、地下水中のイオンとして Ca^{2+} のみを取り上げ、主成分が Ca^{2+} で、微量成分が放射性陽イオンであるという 2 成分系について実験的研究を行った。この結果、放射性陽イオンの分配係数値 K_{dA} 、液相中の Ca^{2+} 濃度 C_{Ca} の間に成立する実験式として

$$Kd_A = m \cdot (C_{Ca})^{-n} \quad (I-2-2)$$

を得た。さらに (I-2-2) 式の m 値, n 値について検討した結果、放射性陽イオンのみかけの電荷の数、水和イオン半径、所属する族および交換吸着体 (土砂) の種類などが m 値, n 値に大きな影響を与えることを知った。

つぎに、地下水中の主成分を Mg^{2+} や Na^+ に置き換えて実験的研究を行い、 Ca^{2+} と Mg^{2+} と Na^+ との比較を行った。この結果、微量な放射性陽イオン A の分配係数値 $Kd_{A \text{ for } x}$ と主成分イオン X の液相中濃度 C_x との間には、(I-2-2) 式と同型の実験式

$$Kd_{A \text{ for } x} = m_x \cdot (C_x)^{-n_x} \quad (I-2-3)$$

が得られた。(I-2-3) 式の中に示された m_x , n_x 値について Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ のそれぞれの影響力を比較した。この結果、一般的には放射性陽イオンの分配に大きな影響を持つのは Ca^{2+} と Mg^{2+} とであり、 Na^+ は ^{137}Cs の土砂への分配時のみに大きな影響力を持つことを知った。

また分配係数値の大小から見れば、放射性陽イオンの地中移動を安全解析する場合には、放射性陽イオンとしては 2 価のもの、なかでも ^{90}Sr (実験には ^{85}Sr を使用した) と ^{60}Co が環境安全上重要であることがわかった。

第 I 編第 3 章では、 Ca^{2+} と Mg^{2+} とが共存して放射性陽イオンの分配に与える影響について研究した。まず、第 I 編第 2 章の実験結果をもとに、2 つのイオンが共存して、放射性陽イオンの分配現象に与える影響について分配モデルを考え、理論的考察を進め、 Ca^{2+} (イオン X), Mg^{2+} (イオン Y) と放射性陽イオン A の分配係数値 $Kd_{A \text{ for } X, Y}$ との間の近似式

$$Kd_{A \text{ for } X, Y} \approx m_x \cdot \frac{\{q_x + (m_y/m_x) \cdot (K_{X-Y})^{-n_x} \cdot q_y\}}{q_{max}} \cdot (C_{XT})^{-n_x} \quad (I-3-18)$$

を得た。(I-3-18) 式をもとに Ca^{2+} と Mg^{2+} との間の平衡定数 $K_{Ca-Mg}(K_{X-Y})$ を求める実験を行った結果、さらに近似式として

$$Kd_{A \text{ for } Ca, Mg} \approx m_{Ca} \cdot (C_{XT})^{-n_{Ca}} \quad (I-3-19)$$

$$C_{xT} \rightleftharpoons C_{Ca} + (K_{Ca-Mg})^{-1} \cdot C_{Mg} \quad (I-3-16')$$

を得た。両式は Ca^{2+} 、 Mg^{2+} が共存して放射性陽イオンの分配に影響を与える現象は、 Mg^{2+} 濃度を両イオンの平衡定数で除して、 Ca^{2+} 濃度を加えてやれば、主要成分として Ca^{2+} のみが存在すると単純化した現象に置き換わることを意味している。そこで、放射性陽イオンとして ^{85}Sr (^{90}Sr の代用) と ^{60}Co とを用い、 Ca^{2+} と Mg^{2+} とを共存させて、分配実験（交換吸着体は第 I 編第 2 章と同じもの）を行った。実験結果を (I-3-16') 式で整理すると、分配現象は (I-3-19) 式と良く一致し、 Ca^{2+} のみに置き換えて現象を取り扱うことができることを知った。

第 I 編第 4 章では強酸性溶液が核種性核種の土砂への分配に与える影響について研究した。核燃料再処理廃水のように硝酸濃度が高い廃水が地中を移動する時には廃水中核種の土砂への分配を支配するのは、通常の Ca^{2+} や Mg^{2+} でなくて硝酸である。まず、模擬廃水として 1 N 硝酸溶液を用い、 ^{90}Sr と ^{137}Cs をこの中へ別々に carrier free および carrier 入り（ストロンチウムの場合 120 ppm、セシウムの場合 250 ppm）で添加して、試料砂を充填したカラムへの通水実験を行った。この結果、 ^{90}Sr は carrier の有無にかかわらず、土砂には分配されずに移動し、 ^{137}Cs は carrier free の時のみわずかに移動に遅れ（廃水の移動速度の $1/60$ で移動したが、通常の地下水の場合は $1/1200$ で移動した）が認められるだけであることがわかった。

つぎに硝酸溶液と土砂との化学的な反応を見るため、1 N 硝酸溶液を試料砂を充填したカラムに通水し、流出水中の Ca^{2+} および Mg^{2+} 濃度と硝酸濃度とを測定した。この結果、 Ca^{2+} および Mg^{2+} が溶出しなくなるまでには半年近くを要し、この時までには溶出した全量は試料砂の交換容量の 50 倍にも達し、またきわめて大まかではあるが、1 N 程度の硝酸溶液では砂 100 g につき 0.02 mol 程度の硝酸が化学反応に使用されるということを知った。なお完全に硝酸で侵された試料砂でも ^{90}Sr や ^{137}Cs の移動を遅らせる能力を侵される前の 7 割程度有することも知った。

強硝酸性廃液たとえば再処理廃水が地中を進むうちに土砂と反応して酸濃度が低下してゆく。そこで carrier free の ^{85}Sr と添加した各種の硝酸濃度の模擬廃水を用いてカラム実験を行った。この結果、種々の硝酸濃度に対応する ^{85}Sr の溶出曲線を得たので、井上の提案した遅れ係数 K_r 値を用いて整理し、分配係数値を逆算した。得られた分配係数値 $K_{dSr \text{ for } H^+}$ と硝酸濃度 C_{H^+} との間には、実験式として

$$Kd_{Sr \text{ for } H^+} \rightleftharpoons m_{H^+} \cdot (C_{H^+})^{-n_{H^+}} \quad (I-4-1)$$

が成立し、第 I 編第 2 章で得られた Ca^{2+} や Mg^{2+} によって支配される時の影響を示す実験式 (I-2-3) 式と同じ型式であることを知った。また、この実験式は硝酸濃度が 3×10^{-3} meq/ml 程度まで成立し、以後硝酸濃度がこれより低くなると、地下水中の Ca^{2+} や Mg^{2+} の影響が大きくなり、 10^{-3} meq/ml 程度以下で硝酸が加わっても、分配係数値には影響を与えないことを知った。

なお再処理廃水中には carrier が沢山含まれているので、carrier を添加した時の ^{85}Sr の分配係数値の変化を硝酸濃度が 0.003 N の模擬廃水を用いて求めたが、分配係数値は carrier の量が増すにしたがって低下し、carrier 120 ppm の時の値はおよそ carrier free の時の $1/3$ であることがわかった。

第 I 編第 5 章では放射性核種の地中移動を予測する上で、分配のはたす役割りについて述べた。第 I 編第 2 章、第 3 章、第 4 章において、放射性核種の分配に関する研究を行ったが、この分配が放射性核種の地中移動を予測する上でどのような意味を持つかについて簡単に検討した。

井上の提案した遅れ係数 K_f を用いて、 ^{60}Co および ^{90}Sr が空隙率 0.45, 土砂密度 2.47 g/cm^3 , 地下水流速 0.1 m/day の地下帯水層を拡散希釈されずに 100 m 移動した時の濃度 C と移動前の濃度 C_0 との濃度比 C/C_0 を分配係数値の関数として図に示した。この結果、両核種の濃度比は分配係数値のわずかな変化で大きく変動し、変動の小さい ^{90}Sr の場合でも、分配係数値が約 10 ml/g 増加するだけで濃度比が約 1 桁も減少することを知った。また、分配係数値を支配する Ca^{2+} 濃度と ^{90}Sr の 100 m 移動後の濃度比 C/C_0 との関係を第 I 編第 2 章の実験結果から求め図に示した。この結果、 ^{90}Sr の濃度比の値は Ca^{2+} がわずかに変化しても大きく変動し、しかもその変動は Ca^{2+} 濃度の値が低い所ほど大きいことがわかった。

したがって、放射性核種の地中移動を試算する上で、放射性核種の分配を研究することは重要で、かつ試算結果を用いて環境への安全評価を行う時は、少なくとも評価の結果が安全側になるように、分配係数を決定するよう、配慮しなければならないことを知った。

第 II 編第 1 章では第 II 編の研究の概要について述べた。まず、放射性廃棄物の陸地

管理に関する工学的問題、研究の現状についてつぎの 7 項目について概要を述べた。

- (1) 処理に関する研究の現状
- (2) 陸地保管法に関する現状
- (3) 放射性核種の地中移動に関する研究
- (4) 放射性核種の大気中での移動に関する研究
- (5) 放射性廃棄物からの外部被曝に関する研究
- (6) モニタリングに関する研究
- (7) 人体への影響に関する研究

この結果、特に研究を進める必要がある課題として、陸地保管を目的とした放射性廃棄物の固化法に関する研究と目的とする陸地保管地地域における放射性核種の地下移動に関する研究を示し、これらの課題を第Ⅱ編の研究目的とした。

第Ⅱ編第 2 章では某原子力施設構内陸地保管予定地における放射性核種の地中移動に関する調査研究について述べた。我国の某原子力施設の陸地保管予定地 A ブロックについて野外実験を行い、地中に浸入した水の挙動を調査した。A ブロックは泥岩基盤の上に段丘的に砂・粘土互層が堆積して形成されており、周囲を小河川および海で取り囲まれ、降雨のみが浅層地下水の供給源である。A ブロックに観測井群を設け、トレーサーと NaBr を添加した原水を浸入させ、浅層地下水帯水層における原水の挙動を観測井群からの採水によって観察した。この結果、注入した原水の移動速度の概算を行った。また、等濃度曲線を用いて、注入した原水の平面的な挙動を把握した。

一方、放射性核種の地中での移動の遅れを示す遅れ係数 K_f の重要因子の分配係数の測定にあたっては、第Ⅰ編第 3 章で得た結果を応用して、現地では地下水の総硬度のみを測定し、これをもとに Ca^{2+} のみで模擬地下水を作成し、分配係数を測定する方法を提案した。 ^{60}Co および ^{85}Sr についてこの方法で分配係数を測定し、実際の地下水を用いて得た分配係数値と比較した結果、実用可能な程度で一致することを確かめ、運搬に不便な地下水を用いなくても模擬地下水で代用できることを示した。

最後に野外実験の結果得られた注入原水の調査結果と分配係数値を測定して遅れ係数をもとに放射性核種の地中での挙動を推定した。まず、注入原水の移動速度をもとに A ブロック敷地境界までに ^{60}Co および ^{90}Sr が到達するまでの時間と到達した時の自己崩壊による濃度減少比とを計算した。また、注入原水の等濃度曲線をもとに ^{90}Sr の挙動を量的に把握でき、したがって必要な場合には汚染区域を決定して掘削

除去するなど工学的処置で対処できることを示した。

第Ⅱ編第3章では放射性廃棄物の陸地保管を目的としたセメント固化に関する研究について述べた。陸地保管を目的とした放射性廃棄物の固化法としてセメント固化法を取り上げた。陸地保管を目的とした場合には、単に固化体の圧縮強度を上げる点だけにとらわれず、セメント固化することにより固化対象廃棄物の容積が増すことをも併せて考えることが必要であり、この容積増大を示す係数として容積係数 V_F を提案した。

つぎに容積係数 V_F と圧縮強度とを三角座標内で同時に比較する方法すなわち容積評価法を提案し、しかも本法に用いる三角座標には従来から使用されている重量配合比をそのまま使用し、座標内にプロットできることなども併せて述べた。

固化対象物として、グリーンサンド、バーミキュライト、アンバーライト IR-120 B、アンバーライト IRA-410 のイオン交換体を用いセメント固化実験を行い、得た実験結果を容積的評価法で評価した。この結果、本評価法は実用的かつ容易に試験結果を判読できる方法であることを知った。また、従来セメント固化が有利でないと考えられた、これら固化対象物は、陸地保管を目的とした場合には、セメント固化処理が必ずしも不利な方法でないことを知った。

また、本評価法に用いた三角座標内にデータをプロットする手法は、容積評価のみならず、浸出率等の安全評価に関する問題、輸送規則等の制約条件に関する問題、作業性、経済性等に関する問題等を同時に取扱うことができ、これらのデータをあらかじめ、三角座標内にプロットしておけば、目的とする重量配合比の固化体の評価が簡単にでき、きわめて実用的であることを述べた。

第2節 今後の問題点

第Ⅰ編では主として放射性核種の土砂への分配におよぼす地下水中非放射性陽イオン Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ などの影響および核燃料再処理廃水で代表される硝酸性廃液中の H^+ の影響の程度を定量化するための実験的研究を行い、個々の非放射性陽イオンについて影響の程度を示す実験式を工学的見地から得た。しかるに Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ , H^+ 等の非放射性陽イオンが単独で存在し放射性核種の分配に影響を与えることはなく、これらの非放射性陽イオンは競合して影響をおよぼす。そこで第3章において、

これらの非放射性陽イオンが競合して影響をおよぼす時の分配モデルを示したが、実験との照合としては、もっとも簡単に取り扱いことができる Ca^{2+} と Mg^{2+} とが共存する場合のみに限ったが、通常の地下帯水層の場合にはこの研究で得られた方法によって放射性核種の分配の程度を把握できる。核燃料再処理廃水などのような強硝酸性廃液の場合には、理論的取扱いをする場合には Ca^{2+} と H^+ との共存等を考慮し、また水中の成分、酸によって溶出した成分などが沈殿形成によって系外に除去されなければ、第3章で示した分配モデルを用いれば、問題は解決するはずであるが、たとえば、分配モデルにおいて重要な意味をもつ、共存する非放射性陽イオン間の平衡定数が Ca^{2+} と Mg^{2+} の場合には2価同士ではほぼ一定値を示すのに、 Ca^{2+} と H^+ の場合には2価と1価の異価イオンのため一定値を示さないため計算が複雑になるというようなやっかいな問題が生じるため本研究ではこの問題を取り上げなかった。したがって、今後はこのように、異価イオンが共存して影響を与える場合とか、2種に限らず多種の非放射性陽イオンが共存して影響を与える場合などについても電子計算機等を用いて実際に定量化した数値を求めておく必要がある。

また、本編ではコロイド的挙動を示す放射性核種についてはほとんど取扱わなかったが、このような挙動を示す核種についても今後研究を進める必要がある。

Ⅱ編においては、某原子力施設陸地保管予定地周辺における放射性核種の地中での挙動の推定と、陸地保管を目的としたセメント固化の評価とに関する研究を行ったが、まず前者の場合、研究結果は放射性核種の移動速度と水平方向の挙動の推定とにとどまった。しかし、実際には、放射性核種が敷地境界に達した後境界外でどのような挙動をとり、どのような影響を人体に与えるかなども検討する必要がある。また、水平方向の挙動の推定の場合に、必要な時には汚染区域を決定して掘削除去するなど工学的処置で対応できると述べたが、実際に実用的な処置法を検討したり、放射性核種の洩漏をすみやかに検知する方法等を検討する必要がある。

後者の場合には、容積的な面にのみ目標をしぼり、セメント固化に対する評価を行い、浸出率等の安全評価の問題や、輸送規則等の制約条件に関する問題等は、同時に取り扱うことが可能であると述べるにとどまったが、実際に、これらの諸問題をすべて三角座標に取り込んだ実用的なグラフを作成する必要がある。

第3節 謝辞

本論文は京都大学原子炉実験所において、筒井天尊教授の御指導のもとに行った研究結果をまとめたものです。

本研究を行うにあたり、終始、懇切な御指導と御助言をいただいた筒井天尊教授に深く感謝の意を表します。また、著者が本研究に取り組み始めたころから一貫して、御指導、御助言をいただいた京都大学工学部衛生工学教室 岩井重久教授、井上頼輝教授、寺島泰教授に深く感謝いたします。また、御助力をいただいた京都大学原子炉実験所廃棄物処理設備部門の方々に深く感謝いたします。

